



# Caractérisation spectrale et temporelle de l'émission X issue de l'interaction laser - agrégats

Christophe Bonté

## ► To cite this version:

Christophe Bonté. Caractérisation spectrale et temporelle de l'émission X issue de l'interaction laser - agrégats. Physique des plasmas [physics.plasm-ph]. Université Sciences et Technologies - Bordeaux I, 2006. Français. NNT: . tel-00720164

**HAL Id: tel-00720164**

**<https://theses.hal.science/tel-00720164>**

Submitted on 23 Jul 2012

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

N° d'ordre : 3154

**THÈSE**  
présentée à  
**L'UNIVERSITÉ BORDEAUX I**  
ÉCOLE DOCTORALE DE SCIENCES PHYSIQUES ET DE L'INGÉNIEUR  
par **Christophe BONTÉ**  
POUR OBTENIR LE GRADE DE  
DOCTEUR  
SPÉCIALITÉ : NOYAUX, ATOMES, AGRÉGATS et PLASMAS

---

**CARACTÉRISATION SPECTRALE ET TEMPORELLE  
DE L'ÉMISSION X ISSUE DE L'INTERACTION  
LASER – AGRÉGATS**

---

Soutenue le : 28 Avril 2006

Après avis de :

M.	<b>P. AUDEBERT</b>	<b>Rapporteur</b>
M.	<b>B. CARRÉ</b>	<b>Rapporteur</b>

Devant la commission d'examen formée de :

M.	<b>P. AUDEBERT</b>	<i>Directeur de recherche, LULI</i>	Rapporteur
M.	<b>B. CARRÉ</b>	<i>Ingénieur de recherche, SPAM</i>	Rapporteur
M.	<b>F. DORCHIES</b>	<i>Chargé de recherche, CELIA</i>	
Mme	<b>F. HANNACHI</b>	<i>Directeur de recherche, CENBG</i>	Présidente
M.	<b>P. MONOT</b>	<i>Ingénieur de recherche, SPAM</i>	
M.	<b>C. STENZ</b>	<i>Professeur, CELIA</i>	



À mon père, à ma grand-mère.  
Et puis, à Marc, et j'espère d'autres encore !





# Remerciements

Je remercie tout d'abord François Salin et Jean-Claude Gauthier, directeurs successifs du Centre Lasers Intenses et Applications, pour m'avoir respectivement accueillis et permis d'achever le travail entrepris dans de bonnes conditions.

Je remercie également Patrick Audebert et Bertrand Carré, qui ont bien voulu supporter la charge ingrate de rapporteur, ainsi que Pascal Monot et Fazia Hannachi, à qui il n'aura rien non plus échappé dans ce manuscrit.

Je profite de cette page pour exprimer ma gratitude à Christian Stenz et Frédéric Blasco qui ont bien voulu être respectivement directeur et co-directeur de thèse.

Et puis, bien sur, merci à Fabien Dorchies, à qui je ne pourrais exprimer assez ma reconnaissance. Il aura continuellement tenté de me transmettre un peu de sa rigueur, entre autres choses, tout en tact et en patience. J'espère ne pas l'avoir trop épuisé, et laisser suffisamment d'énergie pour les thésards suivants. Bien qu'à la réflexion, je n'en doute pas.

Le travail présenté ici est aussi redevable à plusieurs autres personnes.

Au niveau de l'équipe, d'abord. Outre les personnes déjà citées, je pense bien sur à Tony Caillaud, avec qui j'aurai commencé à travailler au CELIA, et dont j'aurai utilisé des résultats pour cette présente thèse. C'est aussi un rugbyman hors pair qui aura reconnu le hiatus "qui il" plus haut. Plus récemment, la composante expérimentale a été renforcée par l'arrivée de Claude Fourment et de João Santos, et qui contribuent chacun à renouveler la recherche et l'ambiance au sein de l'équipe. Pour les théoriciens, je pense d'une part à Olivier Peyrusse, et d'autre part Hervé Jouin, Bernard Pons et Samuel Micheau. Samuel m'aura permis d'utiliser des résultats basés sur le modèle nanoplasma, et je l'en remercie. J'invite l'aimable lecteur à consulter son manuscrit de thèse pour en savoir plus. Un peu de pub, ça ne fait pas de mal.

Au niveau du laboratoire, ensuite. C'est pour la qualité de la source laser que je tiens à souligner le travail de Stéphane Petit et de Dominique Descamps, qui ne comptent pas leurs heures de travail. Pour différents apports, je pense aussi à Sophie Aussel, Alain Le-Goff, Olivier Dubroca Marsan et Didier Briand.

En dehors du laboratoire, enfin. À Jean-Paul Geindre et Patrick Audebert, je vous remercie pour votre travail sur les cristaux coniques entre autre, et votre disponibilité à partager applications "développées maison" et connaissances. Ensuite, sans rapport avec la thèse, j'aurai en partie goûté la volatilité de poudres dans une enceinte expérimentale lors de la venue de Fabien Quéré et Marina Servol... Et à Fazia Hannachi, Franck Gobet, Mathias Gerbaux entre autre, je leur souhaite bonne continuation dans l'étude d'excitations

nucléaires par laser.

Je profite encore de cette page pour saluer les différents thésards et post-docs qui participent à la vie d'un labo, et m'auront rendu ces années agréables : Olivier, Tony, Benjamin, Jérôme (et ses boss Ghita et Stéphane), Amelle, Stéphane, Íñigo, Baptiste, Mickael, Thomas, Afeintou, Claude et Yoann, etc. Mais également les stagiaires, avec lesquels j'aurai été en contact : Mathias, Maïté, Marion, Nessim, petit Fabien, etc. Au sein du laboratoire voisin, le CPMOH, je pense entre autre à Cyril, Arnaud, Marion, Stéphane, David, et Julien.

J'aurai apprécié aussi le voisinage de bureau avec Eric Constant et avec Eric Mével, de qui je garderai un conseil précieux. En effet, je n'aurai eu de cesse pour garder l'ardeur à la tâche, de me rappeler qu'une belle thèse donne du bonus.

En dehors du laboratoire, je pense aussi à Alain Bretenoux pour l'enseignement, ainsi que Françoise Puissegur et Claude Antoniazzi pour le CIES. Qu'ils soient tous les trois remerciés pour le travail qu'ils font. Et puis, bien sur, Françoise Leroy, la bibliothécaire qui donne bien plus que des livres.

Et puis, pour la vie en dehors du labo, beaucoup de noms reviennent. À nouveau Fabien, re-bien sur, Cécile, Tony, Estelle, Olivier, Carole, Dominique, Cyril et Samuel. Comme on dit dans le 9-5, spéciale dédicace à Valérie, Florence, Jérôme, Benjamin, Claude et Stéphanie, ... À tous, je suis heureux de partager votre amitié. Et bien sur, clin d'oeil spécial à Ilaria.

Enfin, j'estime la chance qui est la mienne pour l'affection et le soutien de ma famille, de ma mère et de mon frère.

# Table des matières

Introduction . . . . .	1
<b>1 Interaction laser-agrégat</b>	<b>9</b>
1.1 Généralités . . . . .	12
1.2 Résultats relatifs à l'émission X . . . . .	21
1.3 Étude expérimentale systématique préalablement menée au CELIA . . . . .	26
1.4 Modèles choisis pour décrire l'interaction et l'émission X . . . . .	36
1.5 Conclusion . . . . .	46
Bibliographie Chapitre 1 . . . . .	49
<b>2 Dispositif expérimental</b>	<b>57</b>
2.1 Présentation schématique . . . . .	59
2.2 La chaîne laser . . . . .	59
2.3 Le jet d'agréats . . . . .	71
2.4 Les diagnostics X . . . . .	81
Bibliographie Chapitre 2 . . . . .	93
<b>3 Détecteur X ultra-rapide</b>	<b>95</b>
3.1 Présentation . . . . .	97
3.2 Caractérisation spatiale et temporelle . . . . .	105
3.3 Gamme dynamique et seuils de détection . . . . .	129

3.4	Résolution spectrale: couplage avec un cristal . . . . .	140
3.5	Calibration absolue dans les X . . . . .	146
3.6	Mise en œuvre . . . . .	147
3.7	Bilan du système de détection . . . . .	151
	Bibliographie 3 . . . . .	153
<b>4</b>	<b>Mesure de la durée de l'émission X</b>	<b>159</b>
4.1	Montage expérimental . . . . .	161
4.2	Résultats expérimentaux . . . . .	166
4.3	Discussion et simulation . . . . .	174
4.4	Conclusion . . . . .	186
	Bibliographie Chapitre 4 . . . . .	187
<b>5</b>	<b>Mesure des spectres X résolus en temps</b>	<b>189</b>
5.1	Montage expérimental . . . . .	191
5.2	Résultats expérimentaux . . . . .	193
5.3	Discussion et simulation . . . . .	199
5.4	Conclusion . . . . .	209
	Bibliographie Chapitre 5 . . . . .	211
	<b>Conclusion</b>	<b>213</b>
	Bibliographie Conclusion . . . . .	217





# Introduction

Le rayonnement X permet de sonder la structure de la matière à l'échelle atomique. Un rayonnement X bref impulsionnel est le moyen privilégié d'étudier la dynamique de cette structure. Réduire la durée des impulsions X autorise à étendre le champ d'étude à des phénomènes dont les temps caractéristiques sont de plus en plus infimes. Dans ce cadre, le dessein actuel est d'atteindre des durées de rayonnement X telles que l'on puisse obtenir des informations sur la dynamique de réseaux cristallins ou de molécules, entre autres exemples, qui ont des durées caractéristiques de l'ordre de, voire inférieures à, la picoseconde ( $10^{-12}$  s).

Afin de produire de tels rayonnements X brefs impulsionnels, on peut utiliser le rayonnement émis par une particule chargée qui voit sa vitesse se modifier. C'est sur ce principe qu'est basé le rayonnement issu des synchrotrons. Le rayonnement issu de telles installations peut atteindre plusieurs dizaines de keV, mais sa durée est actuellement limitée à une dizaine de picosecondes. Des projets couplant les synchrotrons ou les accélérateurs avec d'autres techniques sont en cours d'élaboration pour réduire la durée de l'émission, tel que le laser à électron libre par exemple [Couprie 00]. Ces perspectives sont à mettre en balance avec le fait qu'il s'agit d'installations de grandes dimensions et que l'investissement financier est important.

Un autre moyen de produire du rayonnement X bref impulsionnel est basé sur l'interaction laser-matière. L'avènement d'impulsions laser ultra-courtes (inférieur à 30 fs) et intenses (jusqu'à plus de  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>) permet de générer du rayonnement X dont la durée peut être de l'ordre de 100 fs en focalisant les impulsions lumineuses sur des cibles solides par exemple. L'interaction avec des cibles solides génère du rayonnement X de la manière suivante. L'impulsion lumineuse excite les atomes de la cible et crée des électrons libres, dont la distribution peut être divisée en populations thermique et suprathermique.

- Cette dernière fraction plus énergétique peut se propager en partie dans le corps de la cible et ioniser les couches K des atomes. Ces atomes se désexcitent en émettant un rayonnement X monochromatique dit  $K_\alpha$  [Rousse *et al.* 01]. On comprend ainsi que la durée du rayonnement X émis est limitée par la durée de l'impulsion laser, par le temps de désexcitation ainsi que par le temps de la propagation et de l'arrêt des électrons et peut être optimisée à quelques centaines de femtosecondes.
- La zone chauffée par le laser émet un rayonnement dit "thermique" plus riche en spectre et plus ajustable (monochromatique ou spectre large selon le matériau et la gamme spectrale). La composante X de ce rayonnement est émise naturellement tant que le plasma est suffisamment chaud et dense. La durée d'émission dé-



pend de l'expansion hydrodynamique du plasma, qui peut être très brutale, et peut avoir des temps caractéristiques allant du domaine sub-picoseconde à la picoseconde [Kieffer *et al.* 00].

- D'autres mécanismes sont à l'étude, couplant des impulsions laser très intenses ( $\geq 10^{19}$  W/cm<sup>2</sup>) avec des électrons relativistes [Leemans *et al.* 00] [Rousse *et al.* 04].

Un atout important du rayonnement X bref généré à partir d'un laser réside dans le fait que l'on peut aisément disposer d'un faisceau laser bref synchrone avec l'impulsion X. On peut alors imaginer des expériences de type pompe-sonde avec un phénomène excité par une impulsion laser femtoseconde et un rayonnement X qui le sonde. Une telle technique a déjà été mise en œuvre par de nombreuses équipes. Les phénomènes physiques envisagés peuvent être la fusion non thermique (transition de phase solide-liquide ultrarapide) [Chin *et al.* 99] [Rousse *et al.* 01b] [Sokolowski-Tinten *et al.* 01] [Feurer *et al.* 02], la transition isolant-métal (solide-solide) dans le VO<sub>2</sub> [Cavalleri *et al.* 01a], les phonons optiques [Sokolowski-Tinten *et al.* 03] et acoustiques [Cavalleri *et al.* 00] [Cavalleri *et al.* 01b], la photo-dissociation de molécules en phase gazeuse [Ràksi *et al.* 96], ou bien encore l'effet Auger assisté par laser [Schins *et al.* 94] [Palianov *et al.* 04]. Une revue récente présente les différents types de sources en œuvre et à l'étude, ainsi que leurs applications à la "science X ultra-rapide" [Pfeifer *et al.* 06].

Le rayonnement issu de l'interaction entre une impulsion laser brève et intense et une cible solide a pour inconvénient de produire des débris, qui peuvent endommager les optiques à haute cadence. De plus, le rendement de conversion de l'énergie laser vers le rayonnement X multi-keV est relativement faible ( $\sim 10^{-5}$  selon la gamme spectrale considérée).

Dans le cadre de l'interaction laser-matière, d'autres cibles ont été envisagées, telles que des feuilles, des gouttelettes, des poudres ou bien encore des agrégats de gaz rare. Pour ce dernier type de cible, un comportement atypique sous irradiation laser intense a été mis en évidence il y a une dizaine d'années. Cet objet physique possède une taille caractéristique plus faible que la longueur d'onde du laser, variant de quelques nanomètres à quelques dizaines de nanomètres. Cette dimension situe les agrégats dans un état intermédiaire entre celui du solide et celui du gaz : la densité locale est proche de celle du solide tandis que la densité moyenne est proche de celle du gaz. Ils n'émettent pas de débris à contrario des cibles solides (explosion complète de l'agrégat) et la cible est facilement renouvelable.

De nombreuses études ont montré l'originalité des agrégats sous irradiation par un champ laser intense. L'absorption de l'énergie laser est très forte ( $\sim 80$  %). La température électronique est très élevée (centaines d'eV à quelques keV). Il y a une forte émission de particules (ions multichargés et électrons énergétiques, voire neutrons pour des agrégats deutérés), ou bien encore de rayonnement de grande énergie (harmonique, EUV et X). Conjointement aux expériences, de nombreux modèles ont été développés, rendant partiellement compte de certaines des observations, comme l'absorption élevée de l'énergie ou bien la distribution énergétique des ions.

Les différentes études réalisées sur les agrégats sous champ laser intense semblent indiquer qu'ils sont de bons candidats pour constituer une source de rayonnement X intense. En revanche, la question de la durée du rayonnement reste entière. D'une part les modèles ne simulent pas le rayonnement X en fonction du temps. D'autre part, les deux équipes

qui ont réalisées des expériences ont obtenues des résultats contradictoires : Shiraishi *et al.* mesurent une durée de 100 ps, limitée par la résolution temporelle, pour l'émission de xénon en couche M ( $\sim 1$  keV) [Shiraishi *et al.* 02], tandis que Larsson *et al.* mesurent une durée caractéristique de l'ordre de 3 ns pour les raies de couche K de l'argon ( $\sim 3$  keV) [Larsson *et al.* 99].

Malgré le nombre d'études réalisées, l'interaction laser intense-agrégat n'est pas encore bien comprise. Le manque de connaissance porte sur la dynamique de l'agréat pendant l'interaction avec le champ laser intense, en particulier la dynamique de l'ionisation, conduisant à des états de charge élevés. L'étude du spectre du rayonnement X peut compléter de façon décisive les informations déjà obtenues. Le rayonnement X provient de la désexcitation d'états d'ions excités par des électrons. Le spectre X est ainsi une source d'information sur la distribution ionique et l'énergie des électrons. La résolution temporelle de ce spectre X est un moyen unique pour obtenir de l'information sur la dynamique de l'interaction laser intense-agrégats.

Nous nous proposons de réaliser une étude du rayonnement X résolu en temps émis par des agrégats irradiés par un champ laser intense. Nous concentrerons notre étude expérimentale sur des agrégats d'argon (rayon  $\sim 100$ - $300$  Å) irradiés par une impulsion laser femtoseconde intense (éclairage crête  $\sim 10^{15}$ - $10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>). Nous développerons un modèle qui s'attachera à décrire le comportement de l'interaction pour ces mêmes conditions.

Il est *a priori* nécessaire de mesurer le spectre X avec une résolution temporelle sub-picoseconde. Pour relever cette gageure expérimentale, il existe dans le cadre de l'interaction laser-matière deux approches permettant de mesurer la durée d'un rayonnement X ultra-bref.

- Une première approche, dite indirecte, consiste à corréler le rayonnement X avec un phénomène court créé par une impulsion laser brève synchrone. Un balayage du décalage entre ces deux impulsions permet d'obtenir la convolution de la durée d'émission du rayonnement X avec la durée caractéristique du phénomène physique. Le phénomène envisagé doit être ultra-bref et avoir une influence sur le rayonnement X. Plusieurs processus ont été envisagés et étudiés, dont notamment les transitions de phase dans les solides, la photo-dissociation de molécules en phase gazeuse, l'effet Auger assisté par laser, etc. Par cette approche, la détermination de la durée d'un rayonnement X nécessite de réaliser au préalable un montage spécifique adapté au phénomène physique choisi pour la corrélation, ce qui rend la mesure de la durée assez complexe. La mesure résolue en temps d'une gamme spectrale entière est, de plus, difficilement réalisable.

- La seconde approche consiste à mesurer directement le rayonnement X avec un instrument dont la résolution temporelle est suffisamment courte (sub-ps).

Un détecteur basé sur des photodiodes sensibles au rayonnement X peut être utilisé. La résolution temporelle atteinte par cette approche est limitée par le module d'échantillonnage rapide ( $\sim 100$  ps pour Shiraishi *et al.* [Shiraishi *et al.* 02]). Ce diagnostic ne résout pas en spectre l'émission X, bien que l'on puisse imaginer une rampe de photodiodes qui permette d'obtenir une information spatiale ou bien spectrale.

Un autre détecteur permet d'obtenir directement l'évolution d'une émission X en

une seule séquence : la caméra à balayage de fente ("*streak camera*"). Cet instrument permet d'obtenir une résolution temporelle de l'ordre de la picoseconde, voire sub-picoseconde, en offrant une résolution spatiale suivant un axe. Le principe de cette approche est le suivant. Le rayonnement X dont nous voulons déterminer la durée est converti en électrons au moyen d'une photocathode. Les électrons sont alors arrachés de la photocathode au moyen de très forts champs électriques, et imagés sur un écran luminescent en sortie d'instrument à l'aide de lentilles électro-statiques. Durant le transport des électrons entre la photocathode et l'écran de sortie, leur dispersion temporelle est convertie en dispersion spatiale au niveau de plaques de déflexion : un champ électrique transverse réalisé au moyen de tensions rapidement variables permet de séparer des électrons successifs.

C'est sur cette seconde approche que nous baserons notre système de détection ultra-rapide pour caractériser en spectre et en temps le rayonnement X émis par des agrégats irradiés par des impulsions laser brèves et intenses.

Le manuscrit s'organise comme suit.

Le chapitre 1 présente les principaux résultats expérimentaux obtenus lors de l'interaction entre une impulsion laser intense et des agrégats de gaz rare, et les modèles théoriques développés pour les reproduire. Une attention particulière portera sur les travaux concernant le rayonnement X émis. Nous présenterons également les modèles que nous avons choisis pour simuler l'interaction laser-agrégat et son émission X.

Nous présentons au chapitre 2 le dispositif expérimental que nous avons mis en œuvre lors de nos campagnes expérimentales : la caractérisation des impulsions laser, du jet d'agrégats, ainsi que les différents diagnostics X utilisés.

Nous avons développé un prototype de détection X ultra-rapide en collaboration avec l'I.N.R.S. Énergie & Matériaux (Varenes, Canada). Les résultats de sa caractérisation complète sont présentés au chapitre 3. Nous précisons notamment la résolution spectrale et temporelle de l'instrument, sa gamme dynamique et les phénomènes à l'origine de leurs limitations.

Le chapitre 4 présente une première campagne expérimentale. Celle-ci a pour objet la résolution temporelle du rayonnement X émis par des agrégats irradiés, sans résolution spectrale. En utilisant des filtres adaptés, nous avons sélectionné la gamme spectrale correspondant à une énergie supérieure à 2 keV. Pour comprendre la raison de l'extrême brièveté de l'émission X des agrégats au regard des cibles solides, nous étudierons l'effet de la géométrie de la cible à l'aide d'un modèle simple d'expansion hydrodynamique.

Enfin, nous présentons au chapitre 5 les résultats d'une seconde campagne expérimentale dans laquelle nous nous sommes attachés à résoudre spectralement et temporellement les raies de couche K des agrégats d'argon irradiés par un champ laser intense. Nous proposons un calcul basé sur le modèle nanoplasma et sur un code collisionnel-radiatif pour simuler la dynamique de l'ionisation et l'évolution temporelle des spectres X de couche K.

# Références Introduction

- [Cavalleri *et al.* 00] Cavalleri A., Siders C.W., Brown F.L.H., Leitner D.M., T'oth C., Squier J.A., Barty C.P.J., Wilson K.R., Sokolowski-Tinten K., Horn von Hoegen M., von der Linde D. et Kammler M.,  
*Anharmonic lattice dynamics in germanium measured with ultrafast x-ray diffraction*, Phys. Rev. Lett. **85** (2000), no. 3, 586–589.
- [Cavalleri *et al.* 01a] Cavalleri A., T'oth Cs., Siders C.W., Squier J.A., Rksi F., Forget P. et Kieffer J.C.,  
*Femtosecond structural dynamics in VO<sub>2</sub> during an ultrafast solid-solid phase transition*, Phys. Rev. Lett. **87** (2001), no. 23, 237401.
- [Cavalleri *et al.* 01b] Cavalleri A., Siders C.W., Rose-Petruck C., Jimenez R., T'oth Cs., Squier J.A., Barty C.P.J., Wilson K.R., Sokolowski-Tinten K., Horn von Hoegen M. et von der Linde D.,  
*Ultrafast x-ray measurement of laser heating in semiconductors : Parameters determining the melting threshold*, Phys. Rev. B **63** (2001), 193306.
- [Chin *et al.* 99] Chin A.H., Schoenlein R.W., Glover T.E., Balling P., Lee-mans W.P. et Shank C.V.,  
*Ultrafast structural dynamics in InSb probed by time-resolved x-ray diffraction*, Phys. Rev. Lett. **83** (1999), no. 2, 336–339.
- [Couprie 00] Couprie M.E.,  
*Short wavelength free-electron laser sources*, C. R. Acad. Sci. Paris, t. 1, Série IV (2000), 329–345.
- [Feurer *et al.* 02] Feuerer T., Morak A., Uschmann I., Ziener Ch., Schwoerer H., Reich Ch., Gibbon P., Förster E., Sauerbrey R., Ortner K. et Becker C.R.,  
*Femtosecond silicon K<sub>α</sub> pulses from laser-produced plasmas*, Phys. Rev. E **65** (2002), 016412.
- [Kieffer *et al.* 00] Kieffer J.-C., Chien C.Y., Dorchies F., Forget P., Gallant P., Jiang Z. et Pépin H.,

- 
- Ultrafast laser-based thermal x-ray sources*, C. R. Acad. Sci. Paris, t. 1, Série IV (2000), 297–303.
- [Larsson *et al.* 99] Larsson J. et Sjögren A.,  
*Evaluation of laser-irradiated Ar clusters as a source for time-resolved X-ray studies*, Rev. Sci. Instrum. **70** (1999), no. 5, 2253–2256.
- [Leemans *et al.* 00] Leemans W., Chattopadhyay S., Ezarey E., Zholents A., Zolotarev M., Chin A., Schoenlein R. et Shank C.V.,  
*Femtosecond X-ray generation through relativistic electron beam-laser interaction*, C. R. Acad. Sci. Paris, t. 1, Série IV (2000), 279–296.
- [Palianov *et al.* 04] Palianov P., Gaudin J., Quéré F., Meynadier P., Perdrix M. et Martin P.,  
*Correlation between copper photoemission spectra and spectra of x-ray pulses produced by sub-picosecond laser-irradiated noble gas clusters*, Laser Optics 2003. Superintense Light Fields and Ultrafast Processes. 30 June–4 July 2003 St. Petersburg, Russia (SPIE, ed.), vol. 5482, 2004, pp. 21–25.
- [Pfeifer *et al.* 06] Pfeifer T., Spielmann C. et Gerber G.,  
*Femtosecond x-ray science*, Rep. Prog. Phys. **69** (2006), 443–505.
- [Ràksi *et al.* 96] Ràksi F., Wilson K.R., Jiang Z., Ikhlef A., Côté C.Y. et Kieffer J.C.,  
*Ultrafast x-ray absorption probing of a chemical reaction*, J. Chem. Phys. **104** (1996), no. 15, 6066–6069.
- [Rousse *et al.* 01a] Rousse A., Rischel C. et Gauthier J.-C.,  
*Colloquium : Femtosecond x-ray crystallography*, Rev. Mod. Phys. **73** (2001), 17–31.
- [Rousse *et al.* 01b] Rousse A., Rischel C., Fourmaux S., Uschmann I., Sebban S., Grillon G., Balcou Ph., Förster E., Geindre J.P., Audebert P., Gauthier J.C. et Hulin D.,  
*Non-thermalmelting in semiconductors measured at femtosecond resolution*, Nature **410** (2001), 65–68.
- [Rousse *et al.* 04] Rousse A., Phuoc K.T., Shah R., Pukhov A., Lefebvre E., Malka V., Kiselev S., Burgy F., Rousseau J.-P., Umstadter D. et Hulin D.,  
*Production of a kev x-ray beam from synchrotron radiation in relativistic laser-plasma interaction*, Phys. Rev. Lett. **93** (2004), no. 13, 135005.
- [Schins *et al.* 94] Schins J.M., Breger P., Agostini P., Constantinescu R.C., Muller H.G., Grillon G., Antonetti A. et Mysyrowicz A.,  
*Observation of laser-assisted Auger decay in argon*, Phys. Rev. Lett. **73** (1994), no. 16, 2180–2183.

- [Shiraishi *et al.* 02] Shiraishi T., Mori M. et Kondo K.,  
*Estimation of the pulse width of x-ray emission from Xe clusters excited by a subpicosecond intense Ti :sapphire laser pulse*, Phys. Rev. A **65** (2002), no. 045201.
- [Sokolowski-Tinten *et al.* 01] Sokolowski-Tinten K., Blome C., Dietrich C., Tarasevitch A., Horn von Hoegen M., von der Linde D., Cavalleri A., Squier J. et Kammler M.,  
*Femtosecond x-ray measurement of ultrafast melting and large acoustic transients*, Phys. Rev. Lett. **87** (2001), no. 22, 225701.
- [Sokolowski-Tinten *et al.* 03] Sokolowski-Tinten K., Blome C., Blums J., Cavalleri A., Dietrich C., Tarasevitch A., Uschmann I., Förster E., Kammler M., Horn von Hoegen M. et von der Linde D.,  
*Femtosecond x-ray measurement of coherent lattice vibrations near the lindemann stability limit*, Nature **422** (2003), 287–289.



# Chapitre 1

## Interaction laser-agrégat

### Sommaire

---

<b>1.1</b>	<b>Généralités . . . . .</b>	<b>12</b>
1.1.1	Résultats expérimentaux . . . . .	12
1.1.1.1	Absorption . . . . .	12
1.1.1.2	Température . . . . .	12
1.1.1.3	Émission de particules . . . . .	13
	Électrons . . . . .	13
	Ions . . . . .	14
	Neutrons . . . . .	14
1.1.1.4	Émission de rayonnement . . . . .	14
	Harmoniques . . . . .	15
	EUV-XUV . . . . .	15
1.1.2	Modèles théoriques . . . . .	16
1.1.2.1	Modèle CEMM (Coherent Electron Motion Model) . . . . .	16
1.1.2.2	Modèle IIM (Ionization Ignition Model) . . . . .	17
1.1.2.3	Modèles nanoplasma . . . . .	17
1.1.2.4	Modèle de Hu & Xu pour l'ionisation . . . . .	18
1.1.2.5	Explosion Coulombienne . . . . .	19
1.1.2.6	Chauffage collisionnel . . . . .	19
1.1.2.7	Codes particuliers . . . . .	20
1.1.2.8	Modèles dits de Thomas-Fermi . . . . .	20
1.1.3	Conclusion . . . . .	21
<b>1.2</b>	<b>Résultats relatifs à l'émission X . . . . .</b>	<b>21</b>
1.2.1	Résultats expérimentaux . . . . .	21
1.2.2	Durée de l'émission X . . . . .	24
	1.2.2.1 Mesures . . . . .	24
	1.2.2.2 Indications des modèles . . . . .	24
1.2.3	Conclusion . . . . .	25
<b>1.3</b>	<b>Étude expérimentale systématique préalablement menée au CELIA . . . . .</b>	<b>26</b>



---

1.3.1	Approche . . . . .	26
1.3.2	Propagation dans le jet d'agrégats d'argon . . . . .	26
1.3.3	Mesures d'absorption . . . . .	27
1.3.4	Présentation d'un spectre X de couche K . . . . .	29
1.3.5	Effet de la polarisation laser . . . . .	31
1.3.6	Effet de la durée laser . . . . .	31
1.3.6.1	Absorption de l'énergie laser . . . . .	31
1.3.6.2	Émission X pour différentes tailles d'agrégats . . . . .	32
1.3.6.3	Émission X pour différentes énergies laser . . . . .	34
1.3.7	Effet du délai entre deux impulsions . . . . .	34
1.3.8	Conclusion . . . . .	35
<b>1.4</b>	<b>Modèles choisis pour décrire l'interaction et l'émission X . .</b>	<b>36</b>
1.4.1	Modèle basé sur l'approche "nanoplasma" . . . . .	36
1.4.1.1	Mécanismes d'ionisation . . . . .	38
	Ionisation en champ fort . . . . .	38
	<i>Ionisation multiphotonique</i> . . . . .	38
	<i>Ionisation "tunnel" et suppression de barrière</i> . . . . .	38
	Ionisation collisionnelle . . . . .	40
1.4.1.2	Mécanisme de chauffage . . . . .	41
1.4.1.3	Émission d'électrons . . . . .	42
1.4.1.4	Température électronique . . . . .	42
1.4.1.5	Mécanismes d'expansion . . . . .	43
1.4.2	Code collisionnel-radiatif Transpec . . . . .	43
1.4.2.1	Rappels de physique atomique . . . . .	44
1.4.2.2	Description du code . . . . .	45
<b>1.5</b>	<b>Conclusion . . . . .</b>	<b>46</b>
	<b>Bibliographie Chapitre 1 . . . . .</b>	<b>49</b>

---

Dans le cadre d'études sur l'interaction d'une impulsion lumineuse intense avec la matière, on peut considérer différents types de cible au regard de leur taille caractéristique par rapport à la longueur d'onde de l'impulsion. Les longueurs d'onde actuellement utilisées vont de 1200 à 100 nm, obtenues par un laser éventuellement doublé/triplé en fréquence à l'aide de cristaux, ou par un rayonnement synchrotron. Les tailles caractéristiques pour les cibles vont du mm (ou plus) pour les cibles solides massives, quelques dizaines de nm selon une dimension pour les feuilles [Audebert *et al.* 02], quelques dizaines de  $\mu\text{m}$  pour les poudres [Servol *et al.* 05], quelques  $\mu\text{m}$  pour les gouttelettes [Fukuda *et al.* 03], et de l'ordre de l'angström pour les atomes isolés. Il faut ajouter dans ce panel une structure intermédiaire entre les cibles massives et les atomes isolés : les agrégats, dont la taille caractéristique varie d'une dizaine à quelques centaines d'angströms.

Les agrégats ont pu être observés dès 1956 par Becker et ses collaborateurs [Becker *et al.* 56], en étudiant des atomes condensés d'argon et de di-azote. Il a été par ailleurs mis en évidence différents types d'agrégats que l'on peut distinguer selon la nature de la liaison liant les atomes entre eux :

- les agrégats covalents ont un ou plusieurs électrons par atome qui assure une liaison chimique, les électrons étant localisés autour des atomes dont ils sont issus,
- les agrégats métalliques ont également des liaisons chimiques qui les lient entre eux, les électrons étant délocalisés au sein de l'agrégat,
- les agrégats de gaz rare sont liés par les forces dipolaires de Van der Waals qui existent entre les atomes.

L'étude de ce nouvel objet est intéressante à plus d'un titre. Tout d'abord, sur un plan tout à fait général, il s'agit d'un "nano-objet" aux propriétés nouvelles, propres à cet objet. Notamment, les effets de surface l'emportent sur les effets de volume, et une variation de sa taille permet d'accéder à un éventail de rapports surface/volume. Des effets "magiques", comme les résonances géantes, ont été mis en évidence au sein d'agrégats métalliques [Bréchnignac *et al.* 93]. Par ailleurs, dans le cadre de l'interaction avec un laser intense, cela permet d'étudier le comportement de nanoplasmas bien isolés. En outre, plusieurs travaux ont démontré qu'on peut utiliser les agrégats irradiés par laser comme source de rayonnement ou de particules, mettant à profit la forte densité locale qui induit une absorption d'énergie élevée, ainsi que la faible dimension de l'objet qui induit peu de débris après l'interaction (moins encore dans le cas d'agrégats de gaz rare).

Nous avons concentré l'étude présentée ici sur les agrégats de gaz rare, avec des tailles de quelques centaines d'angstroms.

La structure de ce chapitre est la suivante. Une première partie présente de manière très générale les différents résultats concernant l'interaction laser intense-agrégats, obtenus tant de manière expérimentale que par une approche de modélisation. La deuxième partie présente les résultats concernant plus spécifiquement le rayonnement X émis par les agrégats irradiés : les résultats expérimentaux ainsi qu'un tour d'horizon des différentes conclusions des modèles présentés. La troisième partie fera une présentation des résultats préalablement obtenus au laboratoire CELIA, expériences réalisées avec le même montage expérimental et les mêmes conditions d'interaction que les travaux présentés dans ce manuscrit de thèse. Enfin, la quatrième et dernière partie présentera les modèles choisis pour décrire l'interaction et le rayonnement X émis par les agrégats.

## 1.1 Généralités

Les agrégats de gaz rare irradiés par une impulsion laser intense présentent des propriétés tout à fait originales d'absorption de l'énergie, d'émission de particules et de rayonnement. Elles ont été étudiées par de nombreuses équipes de recherche depuis une dizaine d'années. Nous présentons dans cette section les principaux résultats expérimentaux obtenus et les principaux modèles proposés pour décrire l'interaction.

### 1.1.1 Résultats expérimentaux

#### 1.1.1.1 Absorption

Zweiback et ses collaborateurs [Zweiback *et al.* 99] au Lawrence Livermore National Laboratory ont pu démontrer que l'absorption totale de l'énergie laser dans un jet d'agrégats était croissante en fonction de l'éclairement crête, ainsi que du rayon moyen des agrégats. Par ailleurs, ils ont montré qu'il y a, pour une énergie laser fixe, un optimum en fonction de la durée du laser. La durée optimale croît avec le numéro atomique de l'élément constituant l'agréat. À titre d'exemple, des agrégats d'argon de rayon moyen de 264 Å, irradiés avec un éclairement crête de  $3.10^{16}$  W/cm<sup>2</sup> et une durée d'impulsion de 300 fs, ont une absorption de plus de 70 %.

L'article de Wabnitz relate quant à lui une des premières expériences réalisées avec le synchrotron DESY à Hambourg [Wabnitz *et al.* 02] [Wabnitz 03], pour laquelle la longueur d'onde du rayonnement était de 97 nm. Avec un éclairement crête de seulement  $7.10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>, des états de charge moyen  $\langle Z^* \rangle = 8$  d'agrégats de 1500 atomes de xénon ont été observés, ce qui, outre une absorption de 400 eV par atome, semble indiquer la signature d'un processus d'ionisation qui n'est pas encore clairement compris.

#### 1.1.1.2 Température

Ditmire estime dès 1995 une température électronique très élevée au sein d'agrégats irradiés par des champs intenses [Ditmire *et al.* 95]. En effet, il mentionne les résultats obtenus en irradiant des agrégats d'argon de l'ordre de 100 Å de rayon initial, par une impulsion laser dont l'éclairement crête atteint  $8.10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> : l'observation d'ions argon Ar<sup>8+</sup> l'amène à estimer la température électronique comme étant supérieure à 250 eV.

Un autre article de Ditmire relate une expérience réalisée à l'Imperial College of Science [Ditmire *et al.* 98]. Des atomes de xénon de  $\sim 30$  Å de rayon initial ( $\sim 2000$  atomes) étaient irradiés par une impulsion laser dont l'éclairement crête était de  $1,5.10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>. Un spectre des électrons éjectés lors de l'interaction a permis d'estimer que la température électronique était plus élevée que 100-500 eV, qui est la température électronique estimée par ailleurs pour une interaction avec les cibles solides.

Zweiback *et al.* rapportent une expérience réalisée au Lawrence Livermore National La-

laboratory consistant à mesurer l'expansion macroscopique du plasma afin d'estimer l'énergie laser déposée [Zweiback *et al.* 00a]. Pour un éclaircissement crête compris entre  $10^{16}$  et  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>, l'évolution du plasma était estimée par interférométrie. Ils estiment que l'énergie absorbée par atome pour des agrégats de deutérium (rayon  $\sim 40$  Å) est de 5 keV. Bien que ne sachant pas la répartition de cette énergie entre les ions et les électrons, la température électronique est *a priori* très importante, et potentiellement plus importante que dans le cadre d'une interaction laser-cible solide.

### 1.1.1.3 Émission de particules

Les agrégats irradiés constituent une source tout à la fois d'électrons et d'ions énergétiques ainsi que de neutrons dans le cas d'agrégats deutérés. Nous présentons ici quelques résultats expérimentaux significatifs concernant l'émission de ces particules.

**Électrons** Shao *et al.* ont observé, en 1996 auprès de l'Imperial College of Science, les électrons émis par des agrégats de xénon irradiés par une impulsion laser dont l'éclaircissement crête était de  $10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>, avec une durée à mi-hauteur de 150 fs. L'observation de la distribution en énergie des électrons semble indiquer la présence de deux populations : une partie des électrons ont leur énergie moyenne comprise entre 0,1 et 1 keV (électrons "tièdes"), et une autre partie des électrons ont leur énergie moyenne comprise entre 2 et 3 keV (électrons "chauds") [Shao *et al.* 96].

Il a été observé que la distribution angulaire des électrons pouvait être liée à la polarisation de l'impulsion laser. En effet, tandis que la distribution est isotrope pour les électrons "chauds", les électrons "tièdes" (composante basse énergie) semblent avoir leur distribution "piquée" selon l'axe de polarisation du laser, avec une largeur à mi-hauteur de 60°. L'explication proposée suppose que les électrons "tièdes" sont émis au début de l'interaction. Ces électrons sont issus d'un chauffage collisionnel à la surface. Le nombre limité de collisions conserve l'anisotropie de l'émission, comme pour le cas d'interaction laser-atomes seuls, avec cependant un élargissement de la distribution angulaire du fait de ces quelques collisions. Les électrons "chauds" sont quant à eux chauffés lors de la résonance, dans l'agrégat, et le nombre de collisions important explique la perte du comportement anisotrope.

Springate et ses collaborateurs ont observés eux aussi en 2003 aux Pays-Bas une émission d'électrons dont l'énergie pouvait aller jusqu'à 6 keV [Springate *et al.* 03]. L'expérience était réalisée avec des agrégats de krypton ou de xénon, avec des tailles variant de  $10^4$  à  $10^6$  atomes par agrégat, avec un éclaircissement crête pouvant atteindre  $5 \cdot 10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>. Cependant, ils n'observent pas de double distribution. En effet, ils observent bien à l'aide de leur appareil à temps de vol un deuxième pic, mais ils attribuent cette observation à un flash de rayonnement UV-XUV-X. Ils observent également que l'émission est anisotrope, avec une distribution angulaire de 40° à mi-hauteur. L'anisotropie est expliquée par l'effet du champ laser qui induit une polarisation de l'agrégat, via les charges en surface, et favorise l'éjection des électrons là où la barrière coulombienne est plus facile à franchir.

**Ions** Purnell rapporte en 1994 les résultats d'une expérience consistant à irradier des agrégats de HI et de  $\text{HI Ar}_m$  ( $m \leq 10$ ), à l'université de Pennsylvanie [Purnell *et al.* 94]. Les conditions expérimentales correspondaient à une énergie laser de 2 mJ, une durée d'impulsion à mi-hauteur de 350 fs, permettant d'atteindre un éclairement crête de  $10^{15}$  W/cm<sup>2</sup>. Des états de charge correspondant à  $\text{I}^{17+}$  et  $\text{Ar}^{8+}$  ont pu être observés.

Lezius, au sein de l'équipe de Martin Schmidt, observe à Saclay des ions d'argon jusqu'à 9 fois chargés, avec un éclairement crête de  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> dont la durée à mi-hauteur de l'impulsion était de 30 ps [Lezius *et al.* 97]. Pour des conditions semblables, l'état de charge de monomères d'argon ne dépasse pas 3. Dans ces conditions, l'énergie cinétique des ions issus de l'agrégat peut dépasser 4,8 keV.

En 1997, Ditmire et l'équipe de l'Imperial College of Science ont étudié le comportement d'agrégats de xénon irradiés [Ditmire *et al.* 97]. Pour un éclairement crête de  $2 \cdot 10^{16}$  W/cm<sup>2</sup> et une durée laser de 150 fs à mi-hauteur, des agrégats de rayon initial de 35 ou 65 Å (soit  $\sim 400$  et  $\sim 2500$  atomes respectivement), les ions étaient émis selon une distribution centrée sur 1 keV et allaient jusqu'à 1 MeV. Les états de charge des ions émis étaient de l'ordre de 7 en moyenne, mais ils ont pu observer des ions  $\text{Xe}^{40+}$ . Ces études furent complétées à l'Imperial College of Science en 2000 et 2002 [Springate *et al.* 00] [Mendham *et al.* 02].

**Neutrons** Todd Ditmire et son équipe du Lawrence Livermore National Laboratory ont pu démontrer la capacité à produire des neutrons depuis des agrégats de deutérium [Ditmire *et al.* 99] [Zweiback *et al.* 00b]. En focalisant 120 mJ, atteignant un éclairement crête de  $10^{16}$  W/cm<sup>2</sup> avec une durée de 35 fs à mi-hauteur, sur des agrégats de molécules deutérium-deutérium de 50 Å de rayon initial, ils ont pu démontrer la production de  $\sim 10^4$  neutrons par tir laser, soit  $\sim 10^5$  neutrons par Joule d'énergie laser, rendant ce moyen de production de neutrons comparable à des installations plus importantes en terme d'efficacité de conversion de l'énergie laser.

Ces résultats, ainsi que ceux obtenus par des équipes de Garching [Pretzler *et al.* 98] et de Berlin [Hilscher *et al.* 01], ont été complétés par une étude réalisée à l'ENSTA [Grillon *et al.* 02]. Grillon relate les résultats obtenus en irradiant des agrégats de méthane deutéré ( $\text{CD}_4$ ) avec près de  $2 \cdot 10^5$  molécules par agrégat, avec une impulsion laser contenant 800 mJ en énergie, dont la durée à mi-hauteur est de 35 fs, atteignant un éclairement crête de près de  $10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>. Le nombre de neutrons produit est croissant en fonction de l'éclairement crête (entre 2 et  $7 \cdot 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>). Pour un éclairement crête de  $7 \cdot 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>, le nombre de neutrons créés dans  $4\pi$ -stéradian est de près de  $9 \cdot 10^3$ . La productions de ces neutrons est interprétée par des réactions de fusion se réalisant entre des ions de deutérium possédant une énergie cinétique suffisante.

#### 1.1.1.4 Émission de rayonnement

Nous présentons dans cette section les résultats relatifs à l'émission de photons, en distinguant d'une part le rayonnement cohérent harmonique, et d'autre part le rayonne-

ment incohérent correspondant à la gamme EUV-XUV. Nous désignons par EUV-XUV la partie correspondant à une longueur d'onde comprise typiquement entre 1 et 100 nm, soit encore entre  $\sim 10$  eV et 1 keV. Le rayonnement encore plus énergétique (multi-keV) sera traité de manière plus approfondie aux sections 1.2 et 1.3 de ce chapitre.

**Harmoniques** Donnelly et ses collaborateurs du laboratoire de Livermore ainsi que de Berkeley ont pu démontrer en 1996 que les agrégats étaient capables d'émettre du signal harmonique [Donnelly *et al.* 96] au même titre que des atomes isolés. En irradiant des agrégats d'argon de 30 Å de rayon initial ( $\sim 3000$  atomes) avec une impulsion laser dont l'éclairement crête est de  $3 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> avec une durée d'impulsion à mi-hauteur de 140 fs, ils ont pu observer du rayonnement harmonique. Ils ont également pu observer que l'énergie de coupure était augmentée de quelques ordres d'harmoniques, comparativement au cas des atomes isolés, atteignant jusqu'à l'ordre 31 (soit une longueur d'onde correspondante de 26,6 nm).

Des études comparables ont été entreprises peu après à l'Imperial College of Science [Tisch *et al.* 97] [Tisch *et al.* 01]. L'expérience consistait à focaliser une impulsion laser atteignant un éclairement crête de  $10^{13}$ - $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> avec une durée à mi-hauteur de 160 fs sur des agrégats contenant  $\sim 10^3$  atomes de xénon (correspondant à un rayon initial de l'ordre de 25 Å). Pour une gamme énergétique d'observation limitée à 80-90 nm, leurs résultats semblent indiquer que la production de rayonnement harmonique est jusqu'à 5 fois supérieure au cas où les atomes ne sont pas sous forme d'agrégats, pour une même densité moyenne d'atomes. L'augmentation de l'intensité du rayonnement harmonique peut être expliquée par l'augmentation du nombre de puits de potentiel autour de l'électron actif, en suivant Hu et Xu [Hu *et al.* 97] (Cf. section 1.1.2.4).

**EUV-XUV** L'importance du rayonnement EUV-XUV émis par des agrégats a été la première fois démontrée par l'équipe de Rhodes, dans un article présenté par McPherson dès 1994 [McPherson *et al.* 94]. L'expérience consistait à irradier des agrégats de krypton (avec une pression en amont de la buse de 9 bars) avec des impulsions laser de 300 fs à mi-hauteur, atteignant un éclairement crête de  $10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>, la longueur d'onde centrale du laser étant centrée sur 248 nm. Ils ont pu mettre en évidence une émission par les agrégats irradiés dans la gamme 5-7,5 Å correspondant aux transitions des couches L du krypton. La création de lacunes dans les couches internes du cortège électronique suggère pour les auteurs l'éventualité de la brièveté du signal.

Ditmire et ses collaborateurs [Ditmire *et al.* 95] ont mis en exergue une durée de rayonnement pour les X peu énergétiques ( $\sim 250$  eV) de l'ordre de la nanoseconde, sans indiquer l'intensité en absolu. Les durées caractéristiques pour les rayonnements énergétiques seront discutées plus loin dans ce chapitre (Cf. section 1.2.2). L'intérêt pour l'application du rayonnement EUV, notamment à la lithographie, a motivé des études complémentaires sur le rayonnement en absolu émis par des agrégats irradiés, comme nous allons le présenter dans les exemples suivants.

Parra *et al.* ont étudié le rayonnement EUV, au Maryland en 2000 [Parra *et al.* 00].

Ils ont observés le rayonnement correspondant à la gamme spectrale allant de 2 à 44 nm d'agrégats d'argon et de krypton, dont le rayon était inférieur à 100 nm, sous irradiation laser, avec une énergie de 50 mJ et une durée d'impulsion variant de 100 fs à 10 ns. Le rayonnement EUV est plus intense pour des durées d'impulsion laser brèves, typiquement comprises entre 100 fs et 1 ps.

Miura et ses collègues de Tsukuba au Japon [Miura *et al.* 00] ont observé le signal émis par des agrégats constitués de  $4,5 \cdot 10^6$  atomes de xénon, irradiés par une impulsion laser dont l'éclairement crête atteignait  $8 \cdot 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>, avec 20 mJ et 350 fs en énergie et en durée à mi-hauteur. Autour de 11 nm, la brillance atteint la valeur de 80  $\mu$ J/nm/sr/tir. Dans la gamme spectrale allant de 5 à 20 nm ( $\sim$  60-250 eV), l'efficacité de conversion peut ainsi atteindre jusqu'à 1,1 % de l'énergie laser incidente.

L'équipe de Kondo, à l'université de Tsukuba, s'est intéressé à l'efficacité de conversion de l'énergie laser en rayonnement EUV [Mori *et al.* 01]. Pour des agrégats comprenant  $\sim 10^6$  atomes de xénon par agrégat, l'efficacité de conversion de l'énergie laser, ici 3,5 mJ, peut atteindre 10 % dans la gamme spectrale allant de 5 à 18 nm, pourvu que la durée de l'impulsion laser soit inférieure à 1 ps.

Ter-Avetisyan présente les résultats d'une expérience réalisée à Berlin en 2001 au Max Born Institut consistant à irradier des agrégats de Xe ( $10^5$ - $10^6$  atomes par agrégat) avec des impulsions laser permettant d'obtenir des éclairements crête allant jusqu'à  $2 \cdot 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>, pour une durée d'impulsion de 50 fs à mi-hauteur [Ter-Avetisyan *et al.* 01]. L'efficacité de conversion à la longueur d'onde de 13,4 nm, avec une largeur de bande spectrale de 2,2 %, a été démontrée comme atteignant 0,5 % dans  $2\pi$  sr.

### 1.1.2 Modèles théoriques

Comme les résultats des diverses expériences présentées en section précédente ont pu nous le démontrer, les agrégats irradiés sont des sources efficaces de particules et de rayonnement. L'intérêt industriel pour le rayonnement EUV a fait se multiplier les expériences qualitatives et quantitatives, et a permis de compléter la caractérisation déjà commencée par quelques expériences pionnières d'importance. Dès les toutes premières expériences, un effort de modélisation a été entrepris en parallèle pour tenter de rendre compte de ces résultats. Cette section a pour objet la présentation des différentes approches qui ont traité de l'interaction laser intense-agrégats.

#### 1.1.2.1 Modèle CEMM (Coherent Electron Motion Model)

Dès 1993, un modèle a été proposé par l'équipe de Rhodes [McPherson *et al.* 93], à Chicago, pour rendre compte des phénomènes observés inattendus, comme l'observation de rayonnement X notamment. Ce modèle est l'extension d'une approche pré-existante [Boyer *et al.* 85], et suppose qu'il n'y a pas de gradient thermique. Il est considéré dans un premier temps que des électrons sont rendus libres, suite à une ionisation partielle par

effet de champ. Ces électrons sont alors accélérés par le champ laser, et interagissent avec les ions, permettant la création de trous en couche interne ("*Inner Shell Excitation*"), ce qui est le préalable à l'émission de rayonnement X au sein de l'agrégat. L'éclairement laser doit cependant être dans une gamme donnée. D'une part, l'éclairement doit être suffisamment important pour permettre l'ionisation des premiers électrons et pour leur permettre d'acquérir suffisamment d'énergie pour ioniser les couches internes. D'autre part, l'éclairement laser ne doit pas être important au point d'ioniser complètement par ionisation tunnel les couches supérieures des atomes.

Peu après, un complément a été apporté par la même équipe pour rendre compte d'états de charge observés et d'intensité de rayonnement très élevés [Boyer *et al.* 94]. Le mouvement des électrons est dans ce nouveau modèle considéré comme collectif et cohérent (Modèle CEMM). Les électrons se comportent *comme s'il n'y avait qu'un seul* "super" électron, de masse  $N.m_e$ , avec  $N$  le nombre d'électrons libres, et  $m_e$  la masse d'un électron, et de charge totale  $N.q_e$ ,  $q_e$  étant la charge électrique d'un électron. Ceci a pour effet d'augmenter significativement l'efficacité des collisions avec l'agrégat et donc de produire plus de lacunes en couches internes, ainsi qu'un état de charge final plus important, ce qui correspond davantage aux observations.

#### 1.1.2.2 Modèle IIM (Ionization Ignition Model)

Rose-Petruck propose à partir de 1997 un "modèle d'ionisation par allumage" basé sur des simulations Monte-Carlo de trajectoires électroniques [Rose-Petruck *et al.* 97]. Il est tout d'abord supposé que les atomes constituant l'agrégat sont ionisés une fois, par suppression de barrière, ce qui est *a priori* vraisemblable avec les éclaircissements considérés, sans prendre en compte l'ionisation tunnel. L'ionisation ainsi arbitrairement initiée libère des électrons qui en retour créent un champ électrique qui écrante le potentiel d'ionisation des ions. Ce phénomène amplifie et rend plus rapide l'ionisation suivante. L'absorption de l'énergie est réalisée par bremsstrahlung inverse. L'ionisation est ainsi collisionnelle, et les électrons ont suffisamment d'énergie pour créer des lacunes en couche interne, en couche K ou L (suivant les atomes considérés pour constituer l'agrégat). Les simulations présentées concernent des agrégats de 25 ou 55 atomes pour des espèces d'argon ou de néon, irradiés par une impulsion laser dont l'éclairement crête considéré va de  $5.10^{15}$  à  $5.10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>. L'agrégat voit ici son rayon augmenter sous l'effet de la répulsion coulombienne.

#### 1.1.2.3 Modèles nanoplasma

Ditmire *et al.* ont proposé en 1996 un modèle plus élaboré pour rendre compte du comportement d'agrégats soumis à un champ laser intense [Ditmire *et al.* 96]. Ce modèle 1D ne considère pas de gradient thermique et suppose que le rayon de l'agrégat est petit devant l'épaisseur de peau, avec une densité répartie de manière homogène. Il est valable pour des agrégats dont le rayon est plus grand que la longueur de Debye, c'est-à-dire qu'il est *a priori* mieux adapté pour rendre compte des gros agrégats. L'ionisation des ions est réalisée au moyen de mécanismes tels que l'ionisation tunnel et l'ionisation collisionnelle,



et le chauffage est supposé réalisé entièrement par l'absorption collisionnelle (autrement appelée *bremsstrahlung* inverse). Ce chauffage induit une pression hydrodynamique qui participe à l'expansion de l'agréat. Ce modèle prend en compte l'émission d'électron hors de l'agréat, et incidemment considère aussi la pression coulombienne. Par le choix des hypothèses, les auteurs sont amenés à prédire un effet de résonance à la densité électronique  $n_e$  valant trois fois une densité critique  $n_c$  définie dans un plasma selon  $n_c = \frac{m_e \varepsilon_0 4 \pi^2 c^2}{q_e^2} \frac{1}{\lambda^2}$ , où  $m_e$  est la masse de l'électron,  $\varepsilon_0$  est la permittivité du vide,  $c$  est la vitesse de la lumière dans le vide,  $q_e$  est la charge électrique d'un électron et  $\lambda$  est la longueur d'onde de l'impulsion laser. Notamment, cela induit une durée optimale de l'impulsion laser (de l'ordre de quelques centaines de femtosecondes), pour une absorption efficace : la densité électronique atteint la valeur  $3n_c$  quand l'éclairement laser est maximal et l'absorption voit sa valeur augmenter très rapidement. La durée de la résonance est quant à elle très brève (quelques dizaines de femtosecondes).

Ce modèle est adapté au régime d'interaction dans lequel sont réalisées nos expériences (taille des agrégats et domaine d'éclairement laser). Par ailleurs, la prise en compte de différents phénomènes (processus d'ionisation, pressions hydrodynamique et coulombienne, etc.) est globalement assez complète. Ces différents arguments nous ont amené à le considérer comme base pour notre propre approche, qui sera détaillée en section 1.4.

Milchberg *et al.* ont développé un code mono-dimensionnel prenant en compte les mêmes mécanismes d'ionisation, d'absorption et d'expansion que Ditmire *et al.*, mais qui rend compte d'un gradient radial de la densité [Milchberg *et al.* 01]. Il observe un effet de résonance également, cette fois se produisant dans le gradient de densité et à une densité électronique  $n_e = n_c$ . Cette résonance est beaucoup plus faible, mais étalée sur une durée beaucoup plus grande. De même que le modèle de Ditmire, ce modèle prévoit une durée optimale du laser pour le chauffage de l'agréat. Pour des agrégats de 60 nm par exemple, la durée optimale de l'impulsion laser pour atteindre un chauffage efficace est de l'ordre de 300 fs. Cependant, aucun résultat concernant les états de charge obtenus par cette simulation n'est indiqué.

#### 1.1.2.4 Modèle de Hu & Xu pour l'ionisation

Un modèle à deux dimensions à puits de potentiel multiples a été développé pour rendre compte spécifiquement du rayonnement harmonique issu d'agréats, comportant 1000 atomes, irradiés par laser [Hu *et al.* 97]. L'ionisation initiale est supposée réalisée par une ionisation multiphotonique. Chaque ion contribue alors au potentiel attractif coulombien. Si on considère un ion entouré d'ions, les plus proches voisins ont un effet sur le champ de l'ion central, et incidemment les niveaux énergétiques possibles s'étoffent. Cette multiplication des niveaux semble favoriser l'ionisation et rendre compte des états de charge élevés observés ainsi que le rayonnement harmonique. Les processus non-linéaires sont démontrés comme étant particulièrement efficaces pour des impulsions très courtes (inférieures à 100 fs).

### 1.1.2.5 Explosion Coulombienne

Last et ses collaborateurs rendent compte de l'explosion coulombienne d'agrégats de xénon  $Xe_n$  et d'argon dopé  $HIAr_n$ , contenant  $n$  constituants (inférieur à 60) [Last *et al.* 97]. Pour le cas de molécules, l'ionisation peut se réaliser lorsque la distance interatomique correspond à la géométrie d'équilibre de la molécule lorsqu'elle est dans son état de neutralité, ou bien l'ionisation peut se réaliser lorsque la distance interatomique est plus grande (dès lors que la molécule commence à exploser). La différence entre ces deux considérations, et qui peut être observée, réside dans ce que pour le second cas, l'énergie cinétique des ions est plus petite, alors que le degré d'ionisation final peut être le même. Il est trouvé que l'énergie cinétique des atomes et ions émis lors de l'interaction est proportionnelle à la taille de l'agrégat, et que, pour une taille donnée d'agrégat, l'énergie cinétique des atomes et des ions est proportionnelle à l'état de charge.

Krainov et Roshchupkin décrivent une explosion coulombienne d'agrégats de xénon contenant 1000 atomes (soit un rayon de 24,5 Å), et soumis à un éclairement crête de  $10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>, selon le processus itératif suivant [Krainov *et al.* 01]. Au sein de l'agrégat, une première ionisation des atomes par effet de champ libre des électrons (ionisation interne, pour "*inner ionization*"). Toujours à l'aide du champ laser, certains de ces électrons sont éjectés de l'agrégat, créant ainsi une ionisation globale de l'agrégat ("*outer ionization*"). L'agrégat s'ionisant, une force de répulsion d'origine coulombienne prend naissance, et l'expansion de l'agrégat commence. Le processus recommence : l'intensité du champ laser augmente, des électrons sont arrachés, et ainsi de suite. Par cette approche, il est trouvé que l'énergie cinétique maximale des ions correspond à l'énergie potentielle coulombienne.

### 1.1.2.6 Chauffage collisionnel

Kostyukov [Kostyukov 01] a étudié l'absorption collisionnelle par bremsstrahlung inverse, en considérant non pas un ion isolé mais un ensemble d'ions sous forme d'agrégat. L'énergie absorbée par l'agrégat est calculée pour des champs électriques polarisés linéairement et circulairement, et les résultats semblent indiquer que l'absorption est plus efficace pour des plasmas issus de l'interaction laser-agrégat que des plasmas issus de l'interaction laser-cible solide massive. On pourra trouver en référence [Brantov *et al.* 03] d'autres travaux relatifs à la valeur du taux de chauffage par bremsstrahlung inverse lors de l'interaction laser-plasma.

Deiss rapporte une approche basée sur la simulation classique du transport, employant un champ moyen pour décrire le champ électrique à l'intérieur de l'agrégat [Deiss *et al.* 06]. La diffusion élastique grand angle est déduite comme étant très efficace pour l'accélération des électrons, sur une durée de l'ordre de quelques cycles optiques. La simulation rend compte notamment de l'émission X pour des agrégats contenant  $2,8 \cdot 10^5$  atomes d'argon, soumis à un éclairement crête de  $3,5 \cdot 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup>, avec une durée d'impulsion de 60 fs. L'état de charge moyen atteint cependant en fin d'interaction une valeur de 6, ce qui est faible au regard des observations expérimentales.

### 1.1.2.7 Codes particuliers

En 1998, Ditmire présente des résultats obtenus par simulation particulière, pour des agrégats contenant jusqu'à 55 atomes [Ditmire 98]. Il montre que l'effet de charge d'espace et que l'ionisation par impact d'électron ont un effet non négligeable sur l'énergie cinétique des ions éjectés lors de l'interaction laser-agrégat.

En 2001, Eloy *et al.* ont exposé leurs résultats basé sur un code "*particle-in-cell*" relativiste pour rendre compte de l'explosion d'agrégats soumis à des champs laser intenses [Eloy *et al.* 01]. En considérant des agrégats d'hydrogène dont le diamètre est de 1  $\mu\text{m}$ , la dynamique de l'interaction semble indiquer que le mécanisme principalement responsable de l'explosion est la force coulombienne. Ils indiquent que l'énergie cinétique des électrons est proportionnelle à la racine carrée de l'éclairement.

Sakabe et ses collaborateurs d'Osaka ont présenté une approche également particulière [Sakabe *et al.* 01], avec des tailles d'agrégats comprises entre 100 et 1000 nm. Les ions acquièrent une énergie cinétique qui peut valoir jusqu'à trois fois l'énergie potentielle électrostatique du nuage ionique. Lors de l'interaction d'un agrégat avec une impulsion laser polarisée linéairement, les ions de faible état de charge ( $C^+$ ) ont pour axe préférentiel lors de l'expansion l'axe perpendiculaire à l'axe de polarisation, tandis que les états de charge plus importants ( $C^{3+}$  et  $C^{4+}$ ) ont pour axe préférentiel d'expansion l'axe parallèle à l'axe de polarisation du laser.

Ces codes particuliers peuvent décrire très bien l'interaction, mais sont très lourds d'utilisation, particulièrement pour de gros agrégats et si toutes les collisions, ionisations et excitations sont prises en compte. Ils ne sont donc adaptés que pour des agrégats de taille modeste la plupart du temps.

### 1.1.2.8 Modèles dits de Thomas-Fermi

Brewczyk *et al.* rendent compte du comportement d'agrégats irradiés par une impulsion laser intense en modélisant de manière classique les trajectoires ioniques, et de manière quantique les trajectoires électroniques, avec la fonctionnelle de densité dépendant du temps [Brewczyk *et al.* 98], basé sur le modèle de Thomas-Fermi où les électrons sont considérés comme un fluide homogène chargé électriquement. L'énergie cinétique des ions émis lors de l'explosion de "relativement gros" agrégats (12 atomes) est plus importante que pour de petits agrégats. Ceci est dû pour les auteurs d'une part à la répulsion coulombienne, liée à l'originalité de la structure en agrégat des ions, et d'autre part à un transfert d'énergie entre l'énergie cinétique des électrons vers les ions.

L'application du modèle de Thomas-Fermi a été utilisé également par Rusek, Lagadec et Blenski pour des agrégats contenant 55 atomes [Rusek *et al.* 00]. A la différence du modèle présenté par Brewczyk, l'expansion est trouvée comme étant initiée par les ions situés dans les couches les plus internes de l'agrégat. Avec cette approche, ils observent que l'effet de pression hydrodynamique est prépondérant pour les ions les plus énergétiques

surtout.

Ces codes sont également limités pour le traitement de gros agrégats.

### 1.1.3 Conclusion

Le comportement atypique des agrégats lorsqu'ils sont placés dans un champ laser intense est à la source de multiples expériences qui ont permis de broser un portrait de l'émission de rayonnement et de particules énergétique diverses. L'absorption de l'énergie laser dans le jet d'agrégats est très importante, supérieure à 70 %. Les particules émises sont de multiple nature : ions, électrons, voire neutrons dans le cas d'agrégats deutérés. Les ions émis sont dans des états de charge particulièrement élevés ( $I^{17+}$ ,  $Ar^{9+}$ ,  $Xe^{40+}$ , etc., observés selon les différentes configurations) et les électrons ont des énergies cinétiques pouvant être de plusieurs keV. Les rendements de conversion dans la gamme EUV semblent suffisamment prometteurs pour entretenir des études à dessein industriel.

Conjointement, des modèles ont été proposés pour rendre compte de tel ou tel aspect de ce comportement original. Cependant, ces modèles ne rendent compte qualitativement que d'un phénomène à la fois, comme les degrés d'ionisation élevés par exemple, ou l'émission harmonique. Autrement, plus fondamentalement, aucun des modèles présentés ne rend compte *globalement* du comportement d'un agrégat irradié (notamment de son rayonnement X). Par ailleurs, les conditions expérimentales changeant d'un résultat à un autre (taille d'agrégat, gaz, énergie et durée laser, ...), il est difficile de dresser un tableau complet de l'interaction. Ceci indique que des expérimentations complémentaires ainsi que des modèles approfondis sont encore nécessaires.

Nous allons dans la partie suivante présenter des résultats plus spécifiques, portant sur le rayonnement X émis par les agrégats lors de leur irradiation par une impulsion laser intense.

## 1.2 Résultats relatifs à l'émission X

### 1.2.1 Résultats expérimentaux

Les premiers résultats démontrant que des agrégats irradiés constituaient une source de rayonnement X ont été obtenus par l'équipe de Rhodes et présentés par McPherson dès le début des années 1990 [McPherson *et al.* 93] [McPherson *et al.* 94]. Une des expériences consistait à irradier des agrégats de Krypton (avec une pression de 9 bars en amont de la buse) avec des impulsions laser de 300 fs à mi-hauteur, permettant d'atteindre un éclairement crête de  $10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>, avec une longueur d'onde de 248 nm. Ils ont pu mettre en évidence une émission par les agrégats irradiés dans la gamme 5-7,5 Å correspondant aux transitions des couches L du krypton.

Ditmire rapporte en 1998 une expérience réalisée à l'Imperial College of Science de Londres [Ditmire *et al.* 98]. Des agrégats de xénon dont la taille est de 200 Å étaient irradiés par des impulsions lumineuses de 0,5 J en énergie et 2 ps en durée à mi-hauteur, permettant d'atteindre  $10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>, avec une longueur d'onde centrale de 1053 ou 526 nm. Les spectres obtenus dans la gamme allant de 12 à 16 Å indiquent qu'il n'y a pas de différence notable entre les deux conditions d'irradiation (1053 ou 526 nm) : l'émission correspondant à des états de charge  $\text{Ce}^{27+}$ ,  $\text{Xe}^{28+}$  et  $\text{Xe}^{29+}$  est très importante.

Kondo compare en 1997 deux expériences réalisées à l'aide de deux lasers [Kondo *et al.* 97]. Il considère l'effet de l'irradiation d'agrégats de xénon (rayon de 2,2 Å) par une impulsion d'une part de 50 mJ et 90 fs en énergie et en durée à mi-hauteur permettant d'atteindre l'éclairement crête de  $1,4 \cdot 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>, avec une longueur d'onde centrale de 800 nm, et d'autre part de 220 mJ et 270 fs en énergie et en durée à mi-hauteur permettant d'atteindre l'éclairement crête de  $10^{19}$  W/cm<sup>2</sup>, avec une longueur d'onde centrale de 248 nm. Les auteurs tirent de cette analyse une loi en  $\lambda^6$ - $\lambda^7$  qui étaye leur modèle CEMM [Schroeder *et al.* 98]. Les auteurs analysent que le rayonnement X, correspondant à l'état de charge  $\text{Xe}^{26+}$  ( $\sim 14,3$  Å), est multiplié par 330 lorsque la longueur d'onde du laser passe de 800 à 248 nm. La principale réserve apportée à ce résultat, par Ditmire notamment [Ditmire *et al.* 98], porte sur l'inégalité des énergies entrant en jeu. D'autre part, les conditions de contraste temporel des impulsions laser étaient très différentes, ce qui pourrait aussi contribuer grandement à la différence observée.

Les équipes de Tsukuba reprirent cette expérience, et les résultats sont présentés par Honda [Honda *et al.* 00]. Les agrégats considérés sont composés de  $\sim 2,9 \cdot 10^6$  atomes de xénon. Les impulsions laser dont la longueur d'onde est centrée sur 800 nm ont une durée à mi-hauteur de 350 fs et comportent 20 mJ en énergie, permettant d'atteindre un éclairement crête de  $4 \cdot 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>. Les impulsions laser dont la longueur d'onde est centrée sur 248 nm ont une durée à mi-hauteur de 130 fs et comportent 20 mJ en énergie, permettant d'atteindre un éclairement crête de  $8 \cdot 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>. Dans la gamme d'observation, comprise entre 8 et 16 Å, l'émission X correspond à 1,5 et 38  $\mu\text{J}$  lorsque la longueur d'onde de l'irradiation est de 800 et 248 nm respectivement, soit un facteur plus grand que 20. Il apparaît cette fois clairement aux auteurs que l'interaction impulsion laser-agrégat est sensible à la longueur d'onde de l'impulsion laser.

Kumarappan et ses collègues de Mumbai ont étudié l'effet de la polarisation sur le rayonnement X [Kumarappan *et al.* 01]. Pour des agrégats comportant 1600 atomes d'argon, ils observent que, pour un éclairement crête variant de 2,5 à  $25 \cdot 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup>, il n'y a pas de différence entre une polarisation du laser linéaire ou circulaire. Par ailleurs, pour un éclairement crête de  $4 \cdot 10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>, ils n'observent pas non plus de dépendance pour une polarisation linéaire ou circulaire pour des agrégats comportant de 180 à  $\sim 3000$  atomes d'argon, en considérant le rayonnement X comme provenant essentiellement des raies de couche K (dans la gamme 2,8 – 3,1 keV).

Issac et ses collègues de Glasgow ont présenté en 1994 leur étude portant sur l'interaction laser-agrégats [Issac *et al.* 04]. Des agrégats composés de  $1,7 \cdot 10^6$  atomes de krypton sont irradiés par une impulsion de 60 fs et 125 mJ en durée à mi-hauteur et en énergie, permettant d'atteindre des éclairements crête de  $1,3 \cdot 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>. L'énergie rayonnée est de 45 nJ dans les raies de couche K, ce qui correspond dans le cas du krypton à une énergie

de 12,7 keV. Le taux de conversion est évalué à  $9,2 \cdot 10^{-7}$  de l'énergie laser.

Parra *et al.* ont étudié, outre le rayonnement XUV dont nous avons déjà discuté en section 1.1.1.4, l'optimum du rayonnement X émis en fonction de la durée de l'impulsion laser [Parra *et al.* 00]. Ils observent que l'intensité du rayonnement X ( $> 1,5$  keV) émis par des agrégats d'argon ou de krypton irradiés par 50 mJ en fonction de la durée d'impulsion, variant entre 100 fs et 10 ns, a un optimum, et la durée d'impulsion optimale correspondante est de l'ordre de 300 fs.

Une des premières études sur l'émission, en absolu, du nombre de photons X émis par des agrégats soumis à une irradiation laser intense est présentée par Dobosz en 1997 [Dobosz *et al.* 97]. Une des expériences consistait à faire varier la taille des agrégats (entre  $0,7$  et  $7 \cdot 10^5$  atomes de krypton par agrégat), pour un éclairement crête constant de  $4 \cdot 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>. Le nombre de photons émis, dont l'énergie est supérieure à 1,5 keV, semble suivre une loi de puissance en fonction du nombre d'atomes par agrégat, pour la gamme d'éclairement étudiée, selon :

$$\overline{N}_p \propto \overline{N}_{\text{Kr}}^{3/2}$$

où  $\overline{N}_{\text{Kr}}$  est le nombre d'atomes de krypton contenu dans un agrégat, estimé à partir d'une loi empirique d'Hagena [Hagena 81] [Hagena *et al.* 72].

Un autre résultat, toujours présenté par Dobosz [Dobosz *et al.* 97] [Dobosz 98], consiste à soumettre des agrégats de krypton contenant  $7 \cdot 10^5$  atomes à un éclairement variable. Le nombre de photons X ( $> 1,5$  keV) émis lors de l'interaction laser-agrégat semble suivre une loi en puissance en fonction de l'éclairement laser, selon :

$$\overline{N}_p \propto I_0^{3/2}$$

où  $\overline{N}_p$  est le nombre de photons X ( $> 1,5$  keV), et  $I_0$  est l'éclairement crête. Ce résultat est interprété par un effet de volume d'interaction. Délimité par un éclairement supérieur à un seuil, le volume d'interaction augmente avec cette loi de puissance pour un faisceau gaussien.

Les résultats présentés par Dobosz présentés ci-dessus permettent, outre la détermination de la dépendance du nombre de photons en fonction de paramètres laser et agrégat, la détermination de l'efficacité de conversion, grâce aux mesures réalisées en absolu [Rozet *et al.* 01]. Ainsi, pour un éclairement crête atteignant près de  $5 \cdot 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>, le nombre de photons X émis par des agrégats contenant  $7 \cdot 10^5$  atomes de krypton est de  $4 \cdot 10^6$ , dans la gamme 1,7-2,1 keV. Le rendement de conversion de l'énergie laser dans les X qui est calculé à partir de ce résultat est de l'ordre de  $1,7 \cdot 10^{-8}$ .

Cette même équipe a montré plus récemment des rendements de conversion plus importants avec une géométrie de jet d'agrégats différente [Lamour *et al.* 05]. Pour des conditions optimales, ils mesurent l'émission par les agrégats de xénon de  $10^9$  photons dont l'énergie est de 4,4 keV, soit un taux de conversion de  $7 \cdot 10^{-6}$ .

## 1.2.2 Durée de l'émission X

### 1.2.2.1 Mesures

Différents groupes ont présenté des résultats dissemblants concernant la mesure de la durée d'émission de l'XUV aux X. Ditmire et son équipe ont mesuré des durées d'émission de l'ordre de la nanoseconde [Ditmire *et al.* 95] [Ditmire *et al.* 96] pour la gamme spectrale correspondant aux UV-XUV. Le rayonnement X a une durée d'émission estimée inférieure à 100 ps par Shiraishi *et al.* [Shiraishi *et al.* 02] (couche M du xénon dans la gamme 0,8-1,5 keV). Les mêmes auteurs observent une durée nanoseconde pour l'émission XUV (couche N du xénon dans la gamme 25-75 eV). Une décroissance de l'ordre de la nanoseconde de l'émission X est observée par Larsson *et al.* (rayonnement de couche K de l'argon  $\sim 3$  keV) [Larsson *et al.* 99]. Nous résumons au tableau 1.1 ces résultats.

Un premier constat peut être réalisé à l'observation de ce tableau : toutes les expériences ont montré que la durée du rayonnement correspondant à la partie peu énergétique du spectre – ici, jusqu'à quelques centaines d'eV – était de quelques nanosecondes. Les deux dernières lignes nous font apparaître un désaccord fondamental : pour le rayonnement dont l'énergie est plus grande que le keV, les mesures permettent d'estimer une durée soit inférieure à 100 ps, mesure limitée par la résolution temporelle [Shiraishi *et al.* 02], soit de 3 ns avec une résolution de 10 ps [Larsson *et al.* 99].

Référence	Agrégat	$N_{at/agr}$	Energie	Durée estimée	Résolution
[Shiraishi <i>et al.</i> 02]	Xe	$4 \cdot 10^6$	$\sim 50$ eV	4,2 ns	100 ps
[Ditmire <i>et al.</i> 96]	Ar	$10^4$ - $10^6$	40-80 eV	quelques ns	10 ps
[Ditmire <i>et al.</i> 96]	Kr	$5 \cdot 10^5$	$\sim 250$ eV	quelques ns	10 ps
[Ditmire <i>et al.</i> 95]	Ar	$10^5$	250 eV	quelques ns	10 ps
[Namba <i>et al.</i> 06]	N <sub>2</sub>	$10^4$	400 eV	0,8 ns	400 ps
[Shiraishi <i>et al.</i> 02]	Xe	$4 \cdot 10^6$	$\sim 1000$ eV	$\leq 100$ ps	100 ps
[Larsson <i>et al.</i> 99]	Ar	$10^5$	$\sim 3000$ eV	3 ns	10 ps

**Tab. 1.1:** *Durée mesurée du rayonnement dans des gammes spectrales correspondant à du signal XUV et X. Les éclairagements sur cible sont de l'ordre de  $10^{16}$ - $10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>. Les durées à mi-hauteur sont de 130, 120 et 100 fs respectivement pour les résultats présentés par Ditmire, Shiraishi et Larsson.  $N_{at/agr}$  désigne le nombre d'atomes estimé par agrégat.*

### 1.2.2.2 Indications des modèles

Le modèle *Coherent Electron Motion* [McPherson *et al.* 93] suppose la création de lacunes dans les couches atomiques profondes au moyen du mouvement cohérent des électrons qui sont accélérés selon le champ laser. *A priori*, ce modèle prévoit implicitement une durée d'émission du rayonnement X aussi courte que la durée de l'impulsion laser et le temps de fluorescence des ions présentant des lacunes en couche profonde. Dans le cas des transitions de couche K de l'argon, ce dernier est de l'ordre de la femtoseconde.

Le modèle *Ionisation Ignition* [Rose-Petruck *et al.* 97] permet la création de lacunes en couches profondes grâce aux collisions électroniques. Les électrons chauffés par bremsstrahlung inverse sont éjectés de l'agrégat, qui voit son expansion initiée par les forces de répulsions coulombienne. Si ce modèle ne dit rien quant au rayonnement X, celui-ci est *a priori* émis tant que les conditions de création de lacunes existent, c'est-à-dire tant que la densité électronique est suffisante.

Abdallah *et al.* considèrent une distribution électronique composée de deux populations, suivant chacune une distribution maxwellienne : une population dite thermique et une population dite supra-thermique [Abdallah, Jr. *et al.* 03]. Le nombre d'électrons chauds est conservé constant au cours du temps. Il considère deux configurations : l'une correspond à une distribution purement thermique, l'autre correspond à une distribution thermique avec 10 % des électrons initiaux répartis dans la population supra-thermique. Il observe qu'il n'y a pas d'effet notable entre ces deux cas sur l'état de charge moyen. La différence est en revanche très grande pour l'intensité du signal émis, ainsi que sur le spectre : la présence d'électrons supra-thermiques a pour effet d'augmenter l'émission X, et d'étendre le rayonnement jusqu'à la raie  $\text{He}_\alpha$ . L'augmentation de la densité électronique a quant à elle pour effet de décaler le spectre vers des énergies plus importantes. Ce modèle ne prévoit cependant pas la durée d'émission X.

Les modèles nanoplasmas ne reproduisent pas bien quant à eux les états de charge observés et ne calculent pas l'émission X. On peut cependant estimer qu'ils prévoient également *a priori* une émission X tant que le plasma est suffisamment chaud et dense. La durée d'émission dépend de la gamme en énergie du rayonnement observé : le signal X nécessitant une température électronique élevée aura une durée d'émission très brève, de l'ordre de la picoseconde, tandis que le rayonnement XUV requiert une température électronique moins élevée qui pourra être maintenue pendant une durée de l'ordre de la nanoseconde. La durée pendant laquelle la température électronique est la plus élevée (et l'émission X intense) dépend du modèle choisi. Le modèle proposé par Ditmire prédit une résonance très fine : la durée de résonance pour l'augmentation de la température électronique est de l'ordre d'une dizaine de femtosecondes, tandis qu'elle est de l'ordre de la durée laser pour le modèle proposé par Milchberg.

### 1.2.3 Conclusion

Nous avons vu que, grâce à l'implication de nombreuses équipes, le comportement des agrégats irradiés a été étudié sous différents aspects. Cependant, ces résultats ont été obtenus pour des conditions expérimentales changeantes. Ce trait soulève même des divergences quant à la description de l'interaction laser-agrégat. Tout d'abord, on a vu que pour une impulsion dont la longueur d'onde correspond au fondamental ou à une longueur d'onde doublée ou triplée en fréquence, les auteurs estiment que l'émission est soit du même ordre de grandeur [Dobosz *et al.* 97], soit multipliée par 20 [Honda *et al.* 00]. Par ailleurs, on a vu que pour la durée d'émission du rayonnement X, les résultats semblent également diverger : les uns estiment la durée d'émission de l'ordre de la nanoseconde, les autres comme étant inférieure à 100 ps. On le voit, ces différents éléments incitent à obtenir



un ensemble de résultats avec les mêmes conditions expérimentales : mêmes propriétés du faisceau laser, mêmes agrégats et même méthode employée. Cette cohérence nécessaire nous amène à présenter en section suivante les résultats d'une étude systématique, réalisée préalablement au laboratoire CELIA.

### 1.3 Étude expérimentale systématique préalablement menée au CELIA

Les résultats présentés dans cette section sont le fruit d'expériences réalisées au laboratoire CELIA, préalablement au travail de thèse présenté dans ce manuscrit. L'intérêt est de présenter un bilan de plusieurs mesures réalisées sur l'interaction laser-agrégats, obtenues avec des conditions expérimentales identiques et les plus maîtrisées possibles. Il s'agit d'agrégats d'argon uniquement, dont le rayon varie de 180 à 350 Å, irradiés avec une énergie sur cible comprise entre 0,5 et 4 mJ et une durée d'impulsion comprise entre 50 et 2000 fs. Ces résultats sont antérieurs à ceux présentés dans les chapitres suivants, et ont été pour la plupart déjà majoritairement exposés par ailleurs [Caillaud *et al.* 03] [Dorchies *et al.* 03] [Dorchies *et al.* 05].

#### 1.3.1 Approche

Notre étude s'est concentrée sur les agrégats d'argon et leur émission dans les raies de couche K (de l'ordre de 3 keV). Ces raies de couche K ont l'intérêt d'être facilement interprétables, ce qui assure une analyse de l'ionisation sans ambiguïté. Elles ont été spectralement résolues à l'aide d'un spectromètre intégré en temps calibré en absolu (Cf. section 2.4.4 pour une description détaillée). Un soin particulier a été apporté à la caractérisation des agrégats, tels que produits dans les conditions expérimentales de l'interaction : sous forme d'un jet dense d'agrégats obtenu juste à la sortie d'une buse (en offrant plus d'agré-gat dans le volume focal pour générer plus de rayonnement X) (voir détails en section 2.3). Dans ce cadre, nous présentons dans les sections suivantes un ensemble de résultats obtenus au laboratoire CELIA.

#### 1.3.2 Propagation dans le jet d'agrégats d'argon

Avec nos conditions expérimentales, il y a coexistence d'une phase gazeuse et d'une phase dans laquelle les atomes se retrouvent sous forme d'agrégats (Cf. section 2.3.3). Des mesures résolues spatialement de l'émission X ainsi que des mesures d'ombroscopie ont montré que les atomes en phase gazeuse modifient fortement la propagation du faisceau laser par un effet de réfraction, en modifiant ainsi le volume d'interaction [Caillaud 04]. En effet, le front avant de l'impulsion laser ionise les atomes résiduels en phase gazeuse ainsi que les atomes sous forme d'agré-gat, et le gradient de densité (transverse à la propagation

du faisceau) ainsi obtenu implique un gradient d'indice optique, qui a pour effet de réfracter le faisceau laser. L'impulsion laser n'atteint de ce fait pas l'éclairement maximal qu'elle aurait atteint à son foyer sous vide. Ce phénomène nous oblige à focaliser le laser en bord de jet d'agrégat. Avec cette géométrie de focalisation, l'éclairement évalué sur cible est diminué d'un facteur de  $3 \pm 1$  [Caillaud *et al.* 06]. Ces résultats ont été confirmés par des simulations de la propagation de l'impulsion laser à l'aide du code WAKE. Ce code a été développé par Mora et Antonsen [Mora *et al.* 97]. Il s'agit d'un code 2D à symétrie cylindrique qui permet de simuler la propagation d'une impulsion laser intense dans un gaz qu'elle contribue à ioniser.

### 1.3.3 Mesures d'absorption

L'énergie absorbée par les agrégats a été déterminée par une technique d'ombroscopie résolue en temps [Caillaud 04, p150-155]. Les travaux présentés dans l'article de Zweiback [Zweiback *et al.* 01] ont été utilisés pour déduire de ces mesures la quantité d'énergie laser absorbée le long de l'axe laser. Un ensemble de clichés réalisés par ombroscopie pour des temps successifs nous permet d'observer l'évolution de la taille du plasma en fonction du temps. La détente radiale du plasma est assimilée à une onde de détente dont le rayon  $r$  en géométrie cylindrique évolue selon :

$$r(t) = \sqrt{r_0^2 + f(\gamma)^2 \left( \frac{E_l}{\rho_0} \right)^{1/2} \times t} \quad (1.1)$$

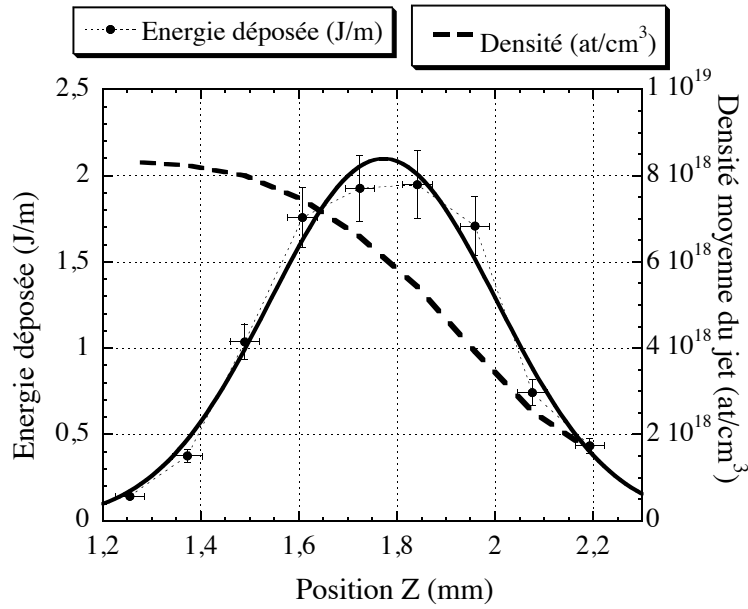
où  $r_0$  est le rayon initial,  $E_l$  l'énergie laser déposée par unité de longueur le long de l'axe laser,  $\rho_0$  la densité initiale,  $\gamma$  le rapport d'adiabacité et  $f(\gamma)$  une fonction définie par [Cavaliere *et al.* 76] :

$$f(\gamma) = ((4/\pi)(\gamma + 1)(\gamma - 1)^2/(3\gamma - 1))^{1/4}$$

En supposant que le coefficient  $\gamma$  a sa valeur correspondant au cas monoatomique et est peu modifié par la présence des agrégats, on peut remonter à partir de l'évolution du rayon  $r$  à l'énergie déposée par unité de longueur  $E_l$ .

La figure 1.1 présente l'énergie déposée par unité de longueur en fonction de la position le long de l'axe de propagation de l'impulsion laser. Les conditions expérimentales correspondantes sont de 420 fs de durée à mi-hauteur pour l'impulsion laser, avec un rayon initial moyen des agrégats de 275 Å et une énergie sur cible de 2,66 mJ. Le laser étant focalisé en bord de jet, on voit ici que le maximum de l'énergie laser est déposée en bord du jet, avant que la densité n'atteigne une valeur plateau.

Le rayon initial  $r_0$  du plasma a été mesuré par ombroscopie avec un délai de sonde très court et confirmé au moyen de simulations de la propagation du faisceau laser réalisées avec le code WAKE [Mora *et al.* 97]. On peut estimer l'énergie moyenne déposée par



**Fig. 1.1:** Énergie moyenne déposée par unité de longueur, évaluée en fonction de la position le long de l'axe de propagation (mesures en ronds noirs et courbe d'ajustement des mesures par une gaussienne en trait continu). Le profil de densité du jet est indiqué en pointillés. La durée de l'impulsion laser est de 420 fs, le rayon initial moyen des agrégats est de 275 Å et l'énergie sur cible est de 2,66 mJ.

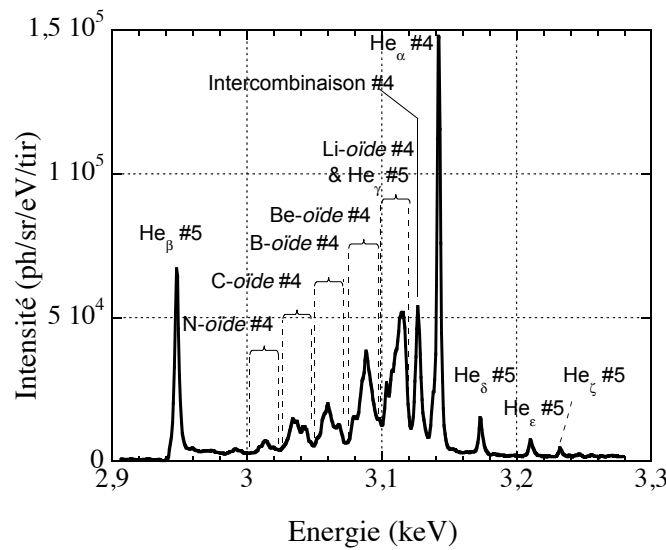
agrégat dans une tranche de 100  $\mu\text{m}$  comprise dans la zone où le dépôt d'énergie est le plus important, à l'aide de chacun des éléments suivants :

- Le rayon initial  $r_0$  du plasma est estimé à l'aide du code WAKE à 16  $\mu\text{m}$  (ce qui correspond au rayon où l'éclairement est supérieur ou égal au seuil d'ionisation de l'argon).
- La densité d'agrégat est de  $1,12 \cdot 10^{12} \times 0,58$  par  $\text{cm}^3$ , le facteur 0,58 prenant en compte la focalisation au bord du jet (où la densité n'est pas maximale), et le nombre d'atomes par agrégat est de  $1,97 \cdot 10^6$  [Dorchies *et al.* 03].
- Le degré d'ionisation moyen  $\langle Z^* \rangle$  est estimé à 14 [Dorchies *et al.* 05].
- De la figure 1.1, on voit que l'énergie maximale déposée dans une tranche de 100  $\mu\text{m}$  est de 0,2 mJ.

Au final, on estime à  $24 \pm 10$  GeV l'énergie absorbée par agrégat, soit  $870 \pm 360$  eV l'énergie absorbée rapportée par électron. En supposant que cette énergie est instantanément absorbée dans une distribution thermalisée d'électrons, ceci conduirait à une température électronique initiale de  $T_e = 580 \pm 240$  eV (les électrons ayant trois degrés de libertés). Il est à noter que cette estimation moyenne l'énergie absorbée par agrégat sur un volume où l'éclairement est très inégal. On peut donc s'attendre à une absorption plus élevée au maximum de l'éclairement.

### 1.3.4 Présentation d'un spectre X de couche K

La figure 1.2 présente un spectre obtenu à l'aide d'un spectromètre haute résolution. Ce spectre correspond à une mesure du rayonnement de couche K émis par des agrégats d'argon de 275 Å de rayon moyen initial (Cf. section 2.3.4) irradiés par des impulsions lasers contenant une énergie de 3,5 mJ et ayant une durée de 300 fs à mi-hauteur. Le spectre présenté est réalisé pour une émission intégrée temporellement et spatialement. Le spectromètre haute résolution et les ordres d'observation #4 et #5 sont détaillés en section 2.4.4.



**Fig. 1.2:** Spectre obtenu à l'aide du spectromètre haute résolution. La durée et l'énergie de l'impulsion laser sont de 300 fs à mi-hauteur et de 3,5 mJ. Le rayon initial moyen des agrégats est de 275 Å.

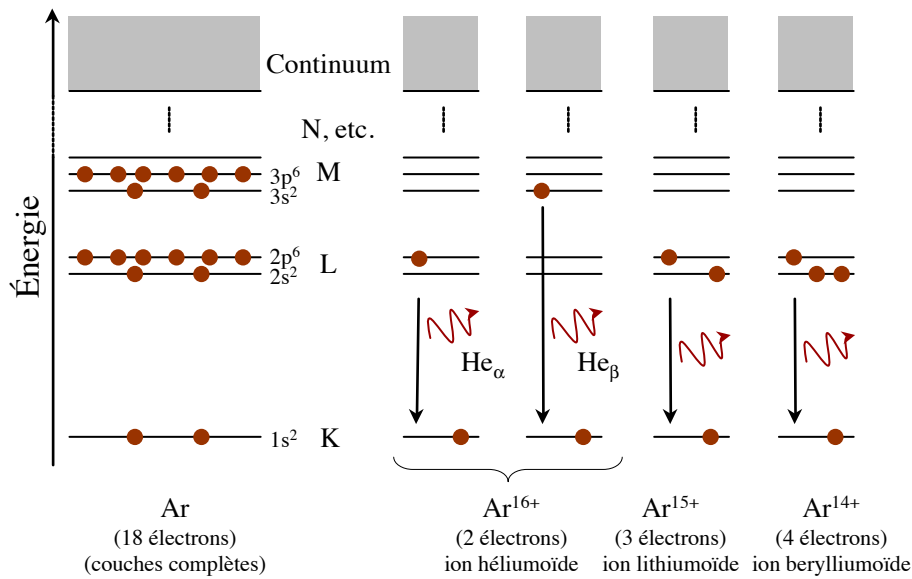
Pour comprendre le spectre présenté en figure 1.2, on peut observer les schémas présentés en figure 1.3. Le schéma de gauche présente les niveaux électroniques complets pour un atome d'argon : 18 électrons répartis selon  $1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^6$  pour l'état le plus stable (non ionisé). Les schémas suivants présentent quelques transitions électroniques. Détaillons les schémas présentés à droite de la figure :

- Le premier schéma présente la structure électronique d'un ion excité  $Ar^{16+}$  : le cortège électronique est constitué par deux électrons, et l'énergie d'excitation est convertie en radiation par le passage de l'électron du niveau de couche L au niveau de couche K (de  $n = 2$  à  $n = 1$ ). Il n'y a dans cette opération que deux électrons : on qualifie alors l'ion d'héliumöide (à l'instar de l'hélium qui ne possède que deux électrons). La raie émise est dite "He $_{\alpha}$ ". Le schéma suivant présente une structure électronique également constituée de deux électrons. La raie est dénommée He $_{\beta}$  afin de la différencier de la transition précédente : l'électron fait perdre l'énergie d'excitation de l'ion en passant du niveau  $n = 3$  cette fois au niveau  $n = 1$ .

- Les deux derniers schémas présentent des transitions d'électrons de couche  $n = 2$  à  $n = 1$ , mais il y a 3 et 4 électrons au total. La présence d'électrons "spectateurs" modifie le champ localement, et, incidemment, la longueur d'onde à laquelle est émise la radiation de désexcitation : plus il y a d'électrons présents, plus les niveaux électroniques sont resserrés, et moins l'énergie de la transition est importante. Aussi, nous retrouvons sur le spectre en partant des énergies les plus fortes vers les plus faibles : la raie  $\text{He}_\alpha$  et ses satellites (Lithiumoïde, Berylliumoïde, Boroïde, etc.).

Nous pouvons préciser ici que la raie  $\text{He}_\beta$  apparaît moins énergétique, à cause d'un recouvrement des ordres de dispersion du cristal au niveau du plan d'observation (Cf. chapitre 2).

Pour expliquer la raie d'intercombinaison, il faut faire appel aux structures fines des couches électroniques. Nous ne sommes en présence que de deux électrons : *stricto sensu*, il s'agit d'une raie héliumoïde. Exactement, la raie correspondant à la résonance hélium- $\alpha$  correspond à une transition  $^1\text{P}_1 - ^1\text{S}_0$  (transition d'un état singulet vers le fondamental), et la raie correspondant à l'intercombinaison correspond à une transition  $^3\text{P}_{0,1,2} - ^1\text{S}_0$  (transition d'un état triplet vers le fondamental).

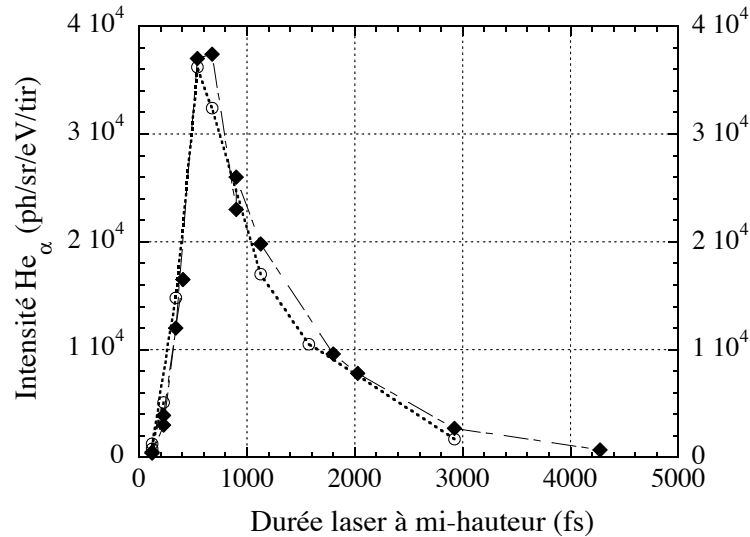


**Fig. 1.3:** Schéma des niveaux d'énergie d'un atome d'Argon. À gauche : couches complètes d'un atome d'Argon neutre. À droite : présentation de gauche à droite. Premier schéma : transition  $\text{He}_\alpha$  ( $n = 2 \rightarrow n = 1$ ) avec deux électrons en tout (ion héliumoïde). Deuxième schéma : transition ( $n = 3 \rightarrow n = 1$ ) avec deux électrons en tout ( $\text{He}_\beta$ ). Troisième schéma : transition ( $n = 2 \rightarrow n = 1$ ) avec trois électrons en tout (ion lithumoïde  $\text{Ar}^{15+}$ ), dont un électron spectateur. Quatrième schéma : transition ( $n = 2 \rightarrow n = 1$ ) avec quatre électrons en tout (ion beryllumoïde  $\text{Ar}^{14+}$ ), dont deux électrons spectateurs.

Nous pouvons noter que l'observation de ces niveaux de charge élevés (jusqu'à  $\text{Ar}^{16+}$ , déduit de l'observation des raies héliumoïdes) n'est pas reproduite par les différents modèles présentés en section 1.1.2.

### 1.3.5 Effet de la polarisation laser

La figure 1.4 présente l'intensité du signal correspondant à la raie  $\text{He}_\alpha$  pour différentes durées d'impulsion laser, avec une énergie constante de 1,7 mJ sur cible. La taille d'agrégat initiale est de 275 Å. Les mesures représentées en ronds creux indiquent les résultats obtenus pour une polarisation linéaire, et les mesures représentées en losanges noirs indiquent les résultats obtenus pour une polarisation circulaire. Nous n'avons pas observé de différence notable dans l'intensité de l'émission X dans la raie  $\text{He}_\alpha$ . Par ailleurs, pour chacune des durées laser étudiées, les spectres obtenus en polarisation linéaire et circulaire ne présentaient pas non plus de différence d'aspect. Ces résultats étendent les observations présentées en section 1.2.1 à notre régime d'interaction où les agrégats ont un rayon compris entre 180 et 350 Å et un éclairement crête compris entre  $10^{14}$  et quelques  $10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>, et confortent l'hypothèse d'un chauffage dominé par l'absorption collisionnelle.



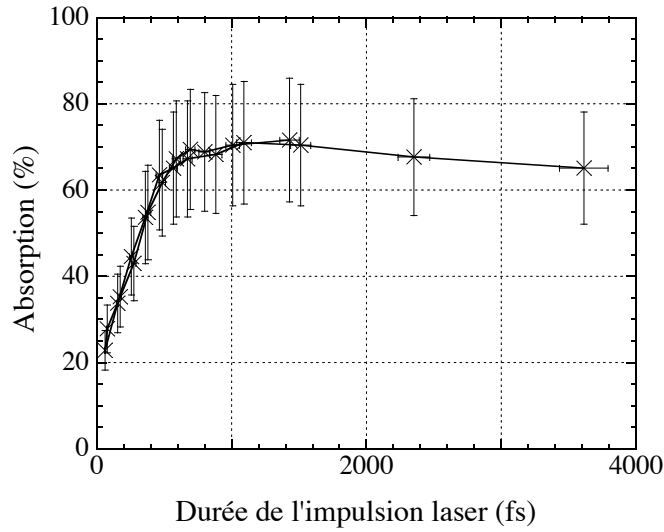
**Fig. 1.4:** *Intensité de la raie  $\text{He}_\alpha$  en fonction de la durée de l'impulsion laser incidente, pour une énergie sur cible de 1,7 mJ. Le rayon initial des agrégats est de 275 Å. Les données représentées en ronds creux indiquent les mesures réalisées avec une polarisation linéaire, tandis que les données représentées en losanges noirs indiquent les mesures réalisées avec une polarisation circulaire.*

### 1.3.6 Effet de la durée laser

#### 1.3.6.1 Absorption de l'énergie laser

Des mesures d'absorption de l'énergie laser par les agrégats ont été réalisées au moyen d'une sphère diffusante [Caillaud 04]. Nous présentons un des résultats obtenus en figure

1.5. Cette figure présente l'absorption totale de l'énergie laser dans le jet d'agrégats en fonction de la durée de l'impulsion laser. L'énergie contenue dans l'impulsion laser était de 2,6 mJ, et la taille moyenne initiale des agrégats était de 275 Å. Les mesures montrent l'existence d'une durée laser optimale pour l'absorption de l'énergie laser. Pour la configuration dont les résultats sont présentés ici, il a été mesuré une absorption maximale de l'ordre de 75 % de l'énergie laser. Ces résultats sont tout à fait concordants avec des mesures réalisées par ailleurs [Zweiback *et al.* 99].

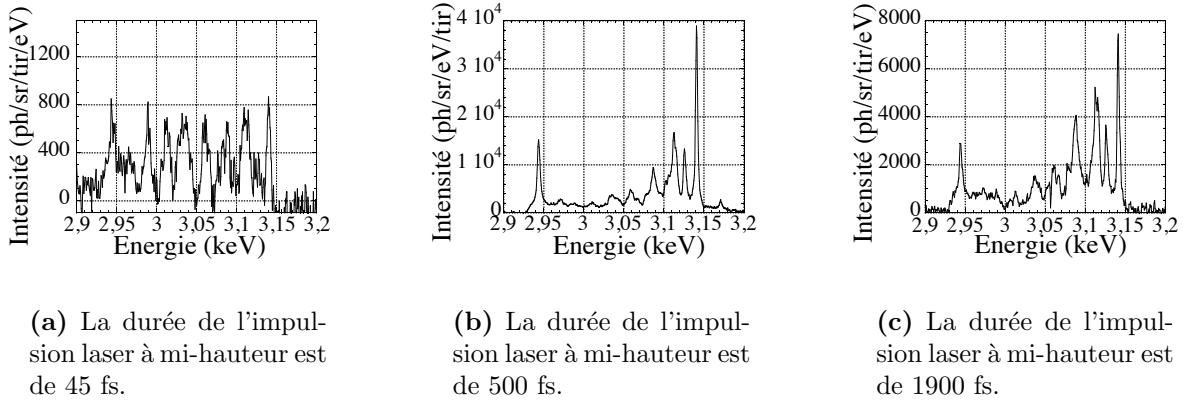


**Fig. 1.5:** Absorption de l'énergie laser dans un jet d'agrégats d'argon (rayon initial moyen de 275 Å) en fonction de la durée de l'impulsion laser. L'énergie dans l'impulsion laser est de 2,6 mJ, et le laser est focalisé en bord du jet.

### 1.3.6.2 Émission X pour différentes tailles d'agrégats

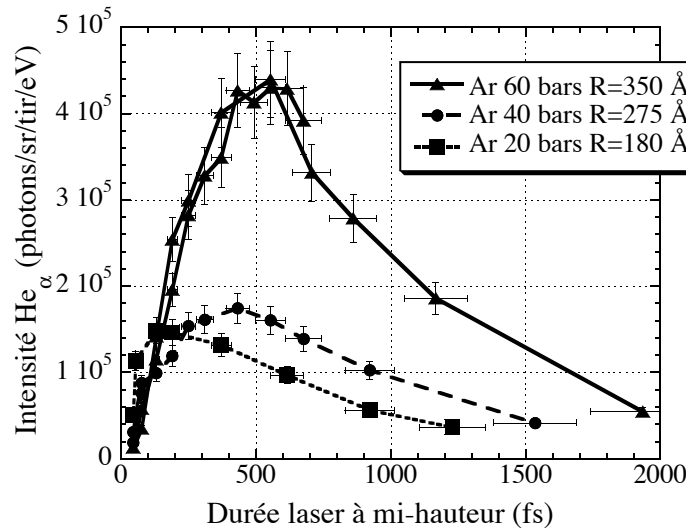
Nous présentons en figure 1.6 des spectres X mesurés pour différentes durées d'impulsion laser [Caillaud 04] [Dorchies *et al.* 05]. L'énergie sur cible est ici de 3,0 mJ, et le rayon initial moyen des agrégats est de 350 Å. Les figures 1.6(a), 1.6(b) et 1.6(c) présentent les spectres mesurés pour des durées d'impulsion à mi-hauteur correspondantes de 45, 500 et 1900 fs. Ces spectres indiquent une évolution du degré d'ionisation maximal atteint ainsi que l'intensité de chacune des raies.

La figure 1.7 présente l'intensité du rayonnement X (correspondant ici à la raie  $\text{He}_\alpha$ ) en fonction de la durée de l'impulsion laser pour différentes pressions en amont de la buse de 20, 40 et 60 bars, correspondant à des rayons d'agrégats initiaux moyens de 180, 275 et 350 Å respectivement [Caillaud 04]. Nous pouvons observer que le rayonnement émis est de plus en plus important pour des tailles d'agrégats croissantes. Également, on observe



**Fig. 1.6:** *Évolution du spectre X pour différentes durées d'impulsion laser. L'énergie laser est de 3,0 mJ sur cible et le rayon initial moyen des agrégats est de 350 Å.*

un maximum de l'émission X en fonction de la durée de l'impulsion laser, et la durée optimale de l'impulsion correspondante augmente avec la taille initiale de l'agrégat.

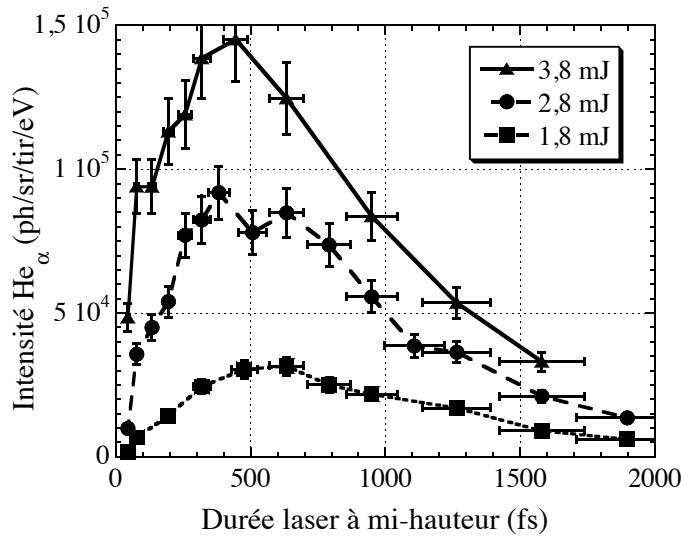


**Fig. 1.7:** *Intensité de la raie  $He_{\alpha}$  en fonction de la durée de l'impulsion laser incidente, pour différents rayons d'agrégat. L'énergie laser est de 2,6 mJ sur cible, et le laser est focalisé en bord du jet.*



### 1.3.6.3 Émission X pour différentes énergies laser

La figure 1.8 présente l'intensité du rayonnement X émis par des agrégats irradiés en fonction de la durée de l'impulsion laser, pour différentes énergies contenues dans l'impulsion [Caillaud 04] [Dorchies *et al.* 05]. Le rayon initial moyen est de 275 Å. On observe d'une part que pour une énergie croissante de l'impulsion laser, le rayonnement X est plus intense, et d'autre part que le maximum de l'émission X est atteint pour une durée laser plus courte lorsque l'énergie laser est plus importante.



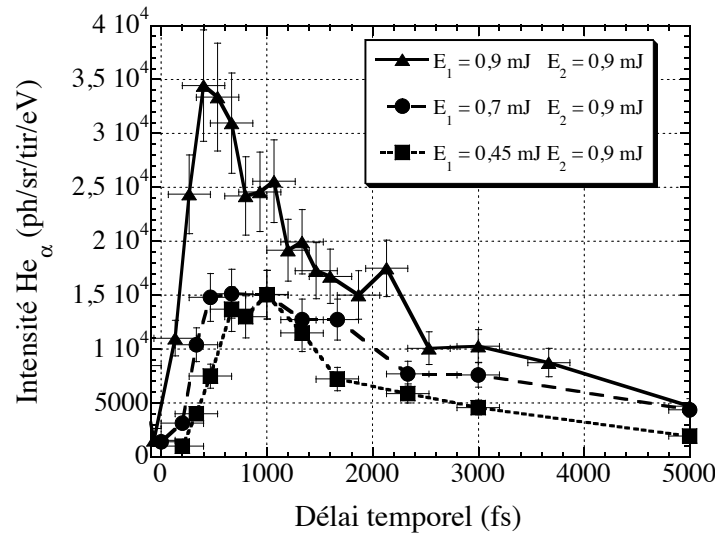
**Fig. 1.8:** Évolution de l'intensité du rayonnement X émis en fonction de la durée de l'impulsion laser à mi-hauteur, pour des énergies sur cible de 1,8, 2,8 et 3,8 mJ. Le rayon initial moyen des agrégats est de 275 Å, et le laser est focalisé en bord du jet de gaz.

On peut remarquer que le fait qu'il existe une durée optimale est en accord avec les modèles nanoplasmas présentés en section 1.1.2. De plus, le comportement de la durée optimale avec le rayon de l'agrégat ou l'énergie laser est en accord avec le fait qu'il faille attendre une expansion de l'agrégat, avec une résonance lorsque  $n_e$  vaut  $n_c$  ou  $3n_c$  selon Milchberg ou Ditmire. Enfin, une durée optimale de l'ordre de quelques centaines de femtoseconde est en accord avec la dynamique sub-picoseconde proposée par ces modèles nanoplasmas.

### 1.3.7 Effet du délai entre deux impulsions

La figure 1.9 présente les résultats d'une expérience consistant à irradier des agrégats d'argon avec deux impulsions laser, avec un délai variable entre les deux impulsions. Les trois courbes en tirets courts, tirets longs et trait plein indiquent les résultats obtenus pour

des énergies contenues dans la première impulsion de 0,45, 0,7 et 0,9 mJ respectivement, avec une énergie fixe de 0,9 mJ dans la seconde impulsion. Le rayon initial moyen des agrégats est de 350 Å. On peut remarquer que l'émission X atteint un maximum pour un certain délai (de l'ordre de plusieurs centaines de femtosecondes). Ce délai optimal est de plus en plus court pour une énergie laser plus importante contenue dans la première impulsion. Ces résultats concordent avec les prédictions des modèles nanoplasmas, mais ne reproduisent pas une résonance aussi piquée que le laisse prévoir le modèle de Ditmire.



**Fig. 1.9:** Intensité de la raie  $He_\alpha$  pour différentes énergies contenues dans deux impulsions successives en fonction du délai temporel séparant les deux impulsions. L'énergie contenue dans la première impulsion est de 0,45 mJ (triangles), 0,7 mJ (ronds) et 0,9 mJ (croix), contre 0,9 mJ dans la seconde impulsion. La durée des impulsions est de  $45 \pm 5$  fs FWHM et le rayon initial moyen des agrégats est de 350 Å.

### 1.3.8 Conclusion

Nous avons vu que l'absorption de l'énergie laser est particulièrement élevée pour des jets denses d'agrégats de grosse taille, typiquement 275 Å pour nos conditions expérimentales. La température électronique que l'on peut en déduire est élevée ( $\sim 600$  eV), du fait sans doute de l'absorption collisionnelle, et des états de charge élevés sont atteints ( $Ar^{16+}$ ). L'intensité du rayonnement X en fonction de la durée de l'impulsion laser semble indiquer que le temps caractéristique d'expansion de l'agrégat est de l'ordre de quelques centaines de femtosecondes. Ces différents résultats expérimentaux semblent en relatif bon accord avec le modèle nanoplasma qui a aussi le mérite d'être le modèle le plus complet décrivant l'interaction. C'est pourquoi nous l'avons choisi comme base à notre propre approche, présentée dans la section suivante.

## 1.4 Modèles choisis pour décrire l'interaction et l'émission X

### 1.4.1 Modèle basé sur l'approche "nanoplasma"

En 1996, Ditmire *et al.* présentent un modèle complet de l'interaction laser-agrégat permettant de rendre compte de l'évolution d'agrégats de taille importante, et de quantifier le nombre d'électrons éjectés et leur vitesse, ou bien encore la vitesse d'expansion de l'agrégat lors de l'explosion et l'état de charge final [Ditmire *et al.* 96]. Nous allons dans cette section décrire l'approche effectuée au CELIA, telle que basée sur ce modèle.

Tout d'abord, nous définissons le champ électrique laser ayant une enveloppe gaussienne selon l'expression :

$$E(t) = E_0 \sin(\omega t) \exp(-(t/\tau)^2) \quad (1.2)$$

où  $\omega$  est la pulsation laser, et  $\tau$  est la durée du champ électrique en  $1/e$ . Pour faire le lien avec les données expérimentales, l'éclairement  $I$  (la notation provenant de l'anglais *intensity*) est lié au champ électrique selon la relation :

$$I(t) = \frac{1}{Z_0} \langle E^2(t) \rangle = I_0 \exp(-2(t/\tau)^2). \quad (1.3)$$

où  $Z_0 = 377 \, \Omega$  est l'impédance du vide,  $\tau$  est toujours la durée du champ électrique en  $1/e$ .

Pour rendre compte de l'interaction laser-agrégat, nous pouvons considérer l'agrégat comme une sphère, et nous pouvons rendre compte du champ électrique au sein de l'agrégat comme suit. Le champ électrique  $E_{int}$  à l'intérieur de l'agrégat prend la valeur du champ électrique du laser aux tous premiers instants. Cependant, dès qu'il y a formation du plasma, il y a création d'un champ dépolarisant qui s'oppose au champ externe. En considérant un champ laser externe  $E_{ext}$  polarisé linéairement, l'approximation dipolaire pour une sphère diélectrique conduit à l'expression suivante :

$$E_{int}(t) = \frac{3}{|\varepsilon + 2|} E_{ext}(t) \quad (1.4)$$

où  $\varepsilon$  est la fonction diélectrique complexe. En suivant les hypothèses de Drude-Lorentz-Sommerfeld, la fonction diélectrique peut s'écrire sous la forme :

$$\varepsilon = 1 - \frac{\omega_{pe}^2}{\omega(\omega + i\nu_{ei})} \quad (1.5)$$

où  $\omega_{pe}$  est la pulsation plasma électronique et  $\nu_{ei}$  est un terme d'amortissement lié aux collisions entre les électrons libres et les ions.

La pulsation  $\omega_{pe}$  est elle-même définie selon :

$$\omega_{pe} = \sqrt{\frac{q_e^2 n_e}{m_e \varepsilon_0}} \quad (1.6)$$

avec  $q_e$  et  $m_e$  respectivement la charge et la masse d'un électron, et  $\varepsilon_0$  la constante de permittivité électrique du vide.

Pour le calcul de la fréquence de collision, nous avons une expression fournie par Johnston dès les années 1970 pour les champs laser de faible intensité [Johnston *et al.* 73]. Celle-ci a été modifiée par Polishchuk et Meyer-Ter-Vehn pour des intensités laser plus importantes [Polishchuk *et al.* 94]. Enfin, David *et al.* ont étendu cette formulation pour des densités électroniques plus importantes par une simulation basée sur la dynamique moléculaire. Les résultats de simulation ont été rendus compacts en réalisant une courbe d'ajustement selon une loi polynômiale en puissances de  $(m_e v_{osc}^2)/(k_B T_e)$  [David *et al.* 04] [David *et al.* 05]. La fréquence de collision électron-ion  $\nu_{ei}$  peut ainsi se mettre sous la forme suivante :

$$\nu_{ei} = \frac{8q_e^4 Z^2}{m_e^2 (4\pi\varepsilon_0)^2} \begin{cases} \times \frac{\alpha(n_i)}{v_{th}^3} \ln \Lambda_1 + \frac{(v_{th}^2 + v_{osc}^2)^{1/2}}{R} & \text{pour } k_B T_e \gg \hbar\omega \\ \times \frac{\alpha(n_i)}{v_{osc}^3} \ln \Lambda_2 + \frac{(v_{th}^2 + v_{osc}^2)^{1/2}}{R} & \text{pour } \hbar\omega \gg k_B T_e \end{cases} \quad (1.7)$$

avec  $v_{th}$  la vitesse liée à l'énergie thermique définie selon  $v_{th} = \sqrt{k_B T_e / m_e}$  et  $v_{osc}$  l'énergie liée à l'énergie d'oscillation de l'électron dans le champ laser définie selon  $v_{osc} = \frac{q_e E_0}{m_e \omega}$ ,  $\alpha(n_i)$  une fonction dépendant de la densité ionique, et  $\ln \Lambda$  un équivalent du logarithme coulombien. Le dernier terme en  $v/R$  prend en compte la considération avancée par Megi *et al.* pour décrire des "collisions de surface" des électrons avec la surface de l'agrégat ionisé. Ce terme a aussi le mérite d'éviter la divergence observée à la résonance  $n_e = 3n_c$  avec le modèle initial de Ditmire, sans véritable sens physique.

La fonction  $\alpha(n_i)(\text{cm}^{-3})$  s'exprime selon :

$$\begin{cases} \alpha(n_i) (\text{cm}^{-3}) = C_1 \cdot n_i \cdot (1 - n_i / C_2) & \text{pour } n_i < 8.10^{20} \text{ cm}^{-3} \\ \alpha(n_i) (\text{cm}^{-3}) = 2,78.10^{20} \ln(n_i(\text{cm}^{-3})) - 1,28.10^{22} & \text{pour } n_i > 6.10^{20} \text{ cm}^{-3} \end{cases} \quad (1.8)$$

d'après une adaptation proposée par Micheau [Micheau 06], et les logarithmes cou-

lombiens sont donnés par :

$$\begin{aligned}\ln \Lambda_1 &= \ln(C_3\xi + C_4\xi^2 + C_5\xi^3 + e^{1/3}\sqrt{\pi/2}) \times \ln\left(1 + \frac{T_e}{\hbar\omega}\right) \\ \ln \Lambda_2 &= \frac{1}{4} \left[ \ln \frac{m_e v_{osc}^2}{\omega} \right]^2\end{aligned}\quad (1.9)$$

où les  $C_i$  sont les coefficients calculés par David *et al.* (Cf. Tab. 1.2 pour les valeurs numériques) et  $\xi = \frac{m_e v_{osc}^2}{k_B T_e}$ .

Coefficient	$C_1$	$C_2(\text{cm}^{-3})$	$C_3$	$C_4$	$C_5$
Valeur	1,09	$2,21 \cdot 10^{33}$	1,042	-0,233	0,139

**Tab. 1.2:** Valeur des coefficients  $C_i$  obtenus par David *et al.* [David *et al.* 04].

#### 1.4.1.1 Mécanismes d'ionisation

Nous présentons dans cette section les mécanismes d'ionisation considérés dans le modèle, à savoir les mécanismes d'ionisation par effet de champ, ainsi que le mécanisme d'ionisation induit par les collisions électron-ions.

**Ionisation en champ fort** Lorsque la matière est placée dans un champ laser, *i.e.* un champ électrique oscillant, suffisamment intense, nous pouvons distinguer plusieurs effets d'ionisation, dont l'efficacité relative dépend de l'intensité laser.

**Ionisation multiphotonique** Le premier des mécanismes d'ionisation se produisant sous influence d'un champ électrique intense est l'ionisation multiphotonique. Il consiste à porter un électron initialement lié à un atome ou un ion vers le continuum en lui transférant l'énergie de plusieurs photons du champ électrique environnant.

**Ionisation "tunnel" et suppression de barrière** Le second mécanisme d'ionisation par effet de champ est l'ionisation "tunnel". Avec le niveau d'intensité laser considéré, il peut y avoir ionisation par diminution provisoire du champ électrique confinant l'électron dans le puits de potentiel de l'atome, par un mécanisme probabiliste (diffusion quantique). Ce mécanisme est de toute première importance en ce qu'il initie la formation du plasma. Le taux d'ionisation tunnel  $W_{tun}$  peut être obtenu à partir du taux d'ionisation moyenné sur un cycle optique, tel que calculé par Ammosov, Delone et Krainov (taux nommé ADK du nom des trois auteurs) [Ammosov *et al.* 86]. Nous avons pour ce taux d'ionisation

l'expression suivante :

$$W^{tun} = I_p \left( \frac{3E}{\pi(2I_p)^{3/2}} \right)^{1/2} \left( \frac{2(2I_p)^{3/2}}{E} \right)^{2n^* - |m| - 1} |C_{n^*l^*}|^2 f(l, m) \exp \left( -\frac{2(2I_p)^{3/2}}{3E} \right) \quad (1.10)$$

avec  $I_p$  le potentiel d'ionisation,  $n^* = \frac{Z}{(2I_p)^{1/2}}$  le nombre quantique principal effectif,  $l^* = n^* - 1$  le nombre quantique orbital effectif,  $m$  le nombre quantique magnétique, et  $f(l, m)$  et  $C_{n^*l^*}$  deux fonctions définies comme suit. On a pour  $f(l, m)$  l'expression suivante :

$$f(l, m) = \frac{(2l+1)(l+|m|)!}{2^{|m|}(|m|)!(l-|m|)!}$$

et pour  $C_{n^*l^*}$  l'expression :

$$C_{n^*l^*} = \frac{1}{2\pi n^*} \left( \frac{4q_e^2}{n^{*2} - l^{*2}} \right)^{n^*} \left( \frac{n^{*2} - l^{*2}}{n^{*2} + l^{*2}} \right)^{l^* + 1/2}$$

Afin de déterminer quel est le mécanisme dominant entre multiphotonique et tunnel, il existe un critère. Celui-ci a été établi par Keldysh, et nous propose le paramètre  $\gamma_K$  suivant :

$$\gamma_K = 2,35 \cdot 10^6 \sqrt{\frac{I_p(\text{eV})}{I_0(\text{W/cm}^2)\lambda^2(\mu\text{m})}} \quad (1.11)$$

où  $I_p$  est le potentiel d'ionisation,  $I_0$  est l'éclairement crête et  $\lambda$  est la longueur d'onde associée à l'impulsion laser. Pour une valeur inférieure à l'unité, ce critère nous permet de considérer que l'ionisation dominante est due à l'ionisation tunnel. Pour le cas d'un atome d'argon par exemple, le potentiel d'ionisation est de 0,5792 unité atomique ( $\sim 15,7$  eV). Aussi, pour un éclairement de  $2 \cdot 10^{14}$  et une longueur d'onde associée au laser de 800 nm, le paramètre de Keldysh est inférieur à 1 et vaut 0,8. Sachant que les ions d'argon apparaissent à partir d'un éclairement de quelques  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, avant l'éclairement crête ( $10^{15}$  à plusieurs  $10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>), on peut considérer que l'ionisation par effet de champ se fait majoritairement par ionisation tunnel, et négliger l'ionisation multiphotonique.

Si l'éclairement laser est suffisamment intense, il y a abaissement de la barrière de potentiel. On parle alors de suppression de barrière et l'émission de l'électron se réalise directement : il s'agit alors d'un effet de seuil et plus d'un phénomène probabiliste.

Ces mécanismes d'ionisation dans le champ laser sont responsables du tout début de l'ionisation de l'agrégat.

**Ionisation collisionnelle** Une fois l'ionisation initiée, des électrons sont libérés et oscillent dans le champ. Ils peuvent à leur tour contribuer à une ionisation supplémentaire du fait de leur collision avec des ions. La vitesse électronique  $v_e$  se décompose vectoriellement selon  $\mathbf{v}_e = \mathbf{v}_{osc} + \mathbf{v}_{k_B T_e}$ , où  $\mathbf{v}_{osc}$  et  $\mathbf{v}_{k_B T_e}$  sont la vitesse d'oscillation et la vitesse thermique, liées respectivement à l'énergie acquise dans le champ oscillant et à la température du gaz d'électrons à l'intérieur de l'agrégat. On peut ainsi décomposer en deux termes le taux d'ionisation  $W^{coll}$  par une collision entre un électron libre et un électron lié à un ion selon :

$$\begin{aligned} W_j^{coll} &= W_j^{osc} + W_j^{k_B T_e} \\ &= n_e \langle \sigma_j v_{osc} \rangle_{c.o.} + n_e \langle \sigma_j v_{k_B T_e} \rangle \end{aligned} \quad (1.12)$$

avec  $\sigma_j$  la section efficace de collision électron-ion,  $v_{osc}(t) = q_e E_{int}(t) |\sin(\omega t)| / (m_e \omega)$  la vitesse d'oscillation de l'électron dans le champ électrique au sein de l'agrégat,  $v_{k_B T_e} = \sqrt{3k_B T_e / m_e}$  la vitesse thermique de l'électron issue de la moyenne sur la distribution considérée maxwellienne des vitesses.

Cependant, ce calcul, tel que réalisé par Ditmire *et al.* [Ditmire *et al.* 96], peut être rendu un peu plus fidèle à la loi de composition des vitesses. En effet, pour une polarisation linéaire du laser, l'axe de la vitesse est orienté selon l'axe de polarisation du laser. Aussi nous avons :

$$v = (v_x^2 + v_y^2 + (v_z + v_{osc})^2)^{1/2}$$

pour le cas de figure où le laser est polarisé selon l'axe  $z$ . En choisissant aléatoirement  $\omega t$  selon une distribution uniforme dans un intervalle  $[0, 2\pi]$  pour la vitesse d'oscillation, et selon une distribution gaussienne pour chacune des trois composantes  $v_i$ , on peut moyenner sur un grand nombre de vitesses ainsi tirées au sort pour permettre le calcul du taux d'ionisation directement, selon :

$$W_j^{coll} = n_e \langle \sigma_j v \rangle \quad (1.13)$$

en prenant  $W_j^{coll} = 0$  pour une énergie cinétique  $\varepsilon_{cin}$  inférieure au potentiel d'ionisation.

L'expression de la section efficace a été quant à elle établie empiriquement par Lotz [Lotz 68] pour un niveau électronique  $j$  selon :

$$\sigma_j = a_j q_j \frac{\ln \varepsilon_{cin} / I_p}{\varepsilon_{cin} I_p} \quad (1.14)$$

où  $a_j$  est un coefficient valant  $1,15 \cdot 10^{-55} \text{ J}^2 \text{ m}^2$ ,  $q_j$  le nombre d'électrons sur la couche externe, et  $\varepsilon_{cin}$  l'énergie cinétique de l'électron.

### 1.4.1.2 Mécanisme de chauffage

L'absorption de l'énergie est supposée réalisée par les électrons lors des déflexions de leur trajectoire au cours des différentes collisions. Ce processus d'absorption collisionnelle est autrement appelé *bremsstrahlung* inverse. Le taux de chauffage induit par laser est obtenu en considérant l'interaction entre une onde plane incidente et une sphère métallique dans l'approximation dipolaire [Landau *et al.* ], et son expression s'obtient sous la forme :

$$\frac{\partial W}{\partial t} = \varepsilon_0 \mathbf{E} \cdot \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \quad (1.15)$$

avec  $\varepsilon_0$  la permittivité du vide,  $\varepsilon$  la fonction diélectrique complexe définie en 1.5, et  $\mathbf{D}$  la densité de flux électrique définie selon :  $\mathbf{D} = \varepsilon \mathbf{E}$ . A l'aide de l'expression définissant le champ électrique interne de l'agrégat (Cf. Eq. 1.4), et en moyennant sur un cycle optique, nous obtenons :

$$\frac{\partial W}{\partial t} = \frac{9\varepsilon_0\omega}{2} \frac{\Im(\varepsilon)}{|\varepsilon + 2|^2} |E_0|^2 \quad (1.16)$$

où  $\Im(\varepsilon)$  est la partie imaginaire de la fonction diélectrique complexe. Nous pouvons exprimer ce taux de chauffage par unité de volume selon l'expression suivante :

$$\frac{\partial W}{\partial t} = \frac{9\varepsilon_0|E_0|^2}{2} \frac{\omega^2\omega_{pe}^2\nu_{ei}}{9\omega^2(\omega^2 + \nu_{ei}^2) + \omega_{pe}^2(\omega_{pe}^2 - 6\omega^2)} \quad (1.17)$$

En utilisant la densité critique  $n_c$  qui s'écrit comme suit :

$$n_c = \frac{m_e\varepsilon_0 4\pi^2 c^2}{q_e^2} \frac{1}{\lambda^2} \quad (1.18)$$

soit  $n_c(\text{cm}^{-3}) = 1,1 \cdot 10^{27} / (\lambda(\text{nm}))^2$ , on peut remarquer que pour  $n_e = 3.n_c$ , la quantité  $|\varepsilon + 2|$  est minimale, et le taux de chauffage est alors le plus grand possible. On peut noter que le système entre une première fois en résonance lorsque la densité électronique  $n_e$  augmente et passe par une valeur égale à trois fois la densité critique. Puis, avec l'expansion de l'agrégat, la densité électronique diminue et le système passe par une deuxième résonance (toujours à  $n_e = 3n_c$ ). On peut noter que le profil de la fréquence de collision électron libre-ion  $\nu_{ei}$  détermine en très grande partie le comportement de l'interaction. Des choix différents dans sa définition peuvent expliquer en grande partie les écarts observés entre deux codes basés sur le modèle nanoplasma.



### 1.4.1.3 Émission d'électrons

Les électrons libérés par ionisation acquièrent comme on l'a vu de l'énergie lors de collisions, par bremsstrahlung inverse. Une partie de ces électrons a une énergie suffisamment importante pour pouvoir s'échapper complètement de l'agréat. Nous nous proposons ici de quantifier le flux d'électrons libres  $W^{fs}$  quittant l'agréat ( $fs$  pour "free streaming").

On considère que seuls peuvent s'échapper de l'agréat les électrons qui réunissent la double condition suivante :

- d'une part être à une distance à la surface inférieure au libre parcours moyen  $\lambda_e$ , défini par le rapport  $\langle v \rangle / \nu_{ei}$
- d'autre part avoir une énergie suffisante pour leur permettre de vaincre la barrière de potentiel due au rappel électrostatique des ions.

Pour un conducteur chargé  $Q$  fois, l'énergie potentielle coulombienne vaut :

$$K_{échapp} = \frac{Qq_e^2}{8\pi\epsilon_0 R}$$

Aussi, lorsque l'électron quitte l'agréat, il ressent  $(Q+1)$  charges en surface, et l'énergie cinétique minimum  $E_{cin_{min}}$  pour permettre l'émission d'un électron en dehors de l'agréat s'obtient de l'égalité  $E_{cin_{min}} = \frac{(Q+1)q_e^2}{8\pi\epsilon_0 R}$ . Le flux d'électrons quittant l'agréat peut se mettre sous la forme [Ditmire *et al.* 96] [Megi 05] :

$$W^{fs} = n_e \frac{2\sqrt{2\pi}}{\sqrt{m_e} \sqrt{k_B T_e}} (K_{échapp} + k_B T_e) \exp\left(-\frac{K_{échapp}}{k_B T_e}\right) \left\{ \begin{array}{ll} \times \frac{\lambda_e}{4R} (12R^2 - \lambda_e^2) & \text{pour } \lambda_e < 2R \\ \times 4R^2 & \text{pour } \lambda_e > 2R \end{array} \right. \quad (1.19)$$

### 1.4.1.4 Température électronique

En partant de la relation générale

$$\frac{d}{dt} \left( \frac{3}{2} n_e k_B T_e \right) = \frac{d}{dt} (\text{composantes de gain en énergie} - \text{composantes de perte en énergie})$$

on obtient la relation suivante donnant l'évolution de la dérivée de la température électronique  $T_e$  par rapport au temps :

$$\begin{aligned} \frac{\partial T_e}{\partial t} = & \frac{2}{3n_e k_B} \left( \frac{\partial W}{\partial t} + \frac{\partial E_{th}}{\partial t} + \Sigma_j N_j W_j U \right) \\ & - \left( \frac{2}{R} \frac{\partial R}{\partial t} T_e + \frac{T_e - T_i}{\tau_{eq}} + \frac{2}{3n_e k_B} \Sigma_j I_p \frac{\partial N_j}{\partial t} + \frac{2}{3n_e k_B} \frac{\partial E_{échapp}}{\partial t} \right) \end{aligned} \quad (1.20)$$

Les termes de gain en température électronique ont trois origines. La première composante correspond au chauffage collisionnel  $\frac{\partial W}{\partial t}$ . La deuxième composante correspond à l'acquisition de l'énergie thermique par les électrons issus de l'ionisation collisionnelle : il est supposé que la thermalisation des électrons est instantanée. La troisième composante correspond à l'énergie d'oscillation de l'électron dans le champ, qui est là aussi supposée immédiatement acquise.

Les termes de perte en température électronique ont quatre origines. La première composante tient compte du refroidissement lié à l'expansion de l'agrégat et provient de l'expression  $\frac{d}{dt} \left( \frac{3}{2} n_e k_B T_e \right)$  qui est une dérivée totale. La deuxième composante correspond à la thermalisation des électrons chauds sur les ions froids par collision coulombienne. La troisième composante correspond à l'énergie cédée par les électrons lors des collisions qui donnent lieu à une ionisation. Enfin, la dernière composante correspond à l'énergie emportée par les électrons qui quittent l'agrégat.

#### 1.4.1.5 Mécanismes d'expansion

Deux pressions pilotent la détente d'un agrégat : la pression cinétique (aussi désignée par "pression hydrodynamique") liée à la vitesse des électrons et des ions, et la pression coulombienne, liée à la répulsion électrostatique.

La pression cinétique peut s'écrire selon :  $P_{cinétique} = n_e k_b T_e + n_i k_B T_i$ . Cependant, en considérant que les temps caractéristiques de transfert d'énergie des électrons vers les ions sont relativement longs, cette expression peut se réduire à sa seule composante électronique  $n_e k_b T_e$ .

La pression coulombienne est induite par le défaut de charge global au sein de l'agrégat, suite à l'échappement libre d'une fraction de la population d'électrons libres. Cette composante de la pression peut se mettre sous la forme suivante :  $P_C = \frac{3Q^2 q_e^2}{2(4\pi)^2 \epsilon_0 r^4}$ .

Ayant maintenant présenté les éléments du modèle rendant compte de l'évolution de l'agrégat, à partir de l'approche nanoplasma, nous allons présenter le code collisionnel-radiatif qui a été utilisé afin de calculer les spectres X en fonction du temps, émis par les agrégats irradiés.

### 1.4.2 Code collisionnel-radiatif Transpec

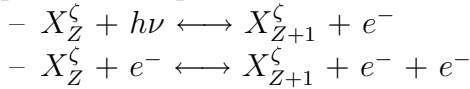
Nous nous proposons de décrire dans cette section le code TRANSPEC. Ce code est un code collisionnel-radiatif qui permet, à partir de l'évolution temporelle des paramètres hydrodynamiques  $T_e$  et  $n_e$  (respectivement la température électronique et la densité électronique), d'obtenir le comportement temporel du rayonnement X émis par un plasma. Nous l'utiliserons d'une part au chapitre 4 où les grandeurs hydrodynamiques sont obtenues à partir d'un modèle hydrodynamique simple. Nous l'utiliserons d'autre part toujours en post-processeur au chapitre 5 où les grandeurs hydrodynamiques sont obtenues à partir du modèle nanoplasma présenté dans la section 1.4.1 précédente. Après des rappels de physique atomique, nous décrirons le code Transpec proprement dit : hypothèses, cadre

d'utilisation et fonctionnement.

### 1.4.2.1 Rappels de physique atomique

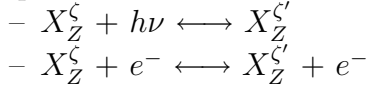
Afin de calculer les spectres émis par une population d'ions, à densité et température donnée, il faut pouvoir rendre compte des processus qui entrent en jeu. Dans ce qui suit,  $X_Z^\zeta$  représente un ion, de charge  $Z$ , dans un état  $\zeta$ .

L'ionisation d'un ion peut être réalisée à l'aide d'un photon d'énergie  $h\nu$  (photo-ionisation) ou d'une collision (ionisation collisionnelle), ce que l'on peut rendre compte respectivement par :



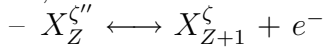
avec  $e^-$  un électron, et la double flèche indique l'existence de processus inverses : respectivement la recombinaison radiative (ou stimulée s'il y a présence active de photon) et la recombinaison à trois corps.

Un ion ou un atome peut également changer d'état sans perdre ou gagner d'électron, par photo-excitation et excitation collisionnelle, dont on peut rendre compte par :



Un processus inverse existe également pour chacune de ces excitations : l'émission spontanée (ou stimulée s'il y a présence active de photon) et la désexcitation collisionnelle respectivement, qui permettent à l'ion de perdre de l'énergie tout en gardant un nombre d'électrons constant.

Enfin, il existe des processus non radiatif et non-collisionnel : le processus Auger est le processus d'émission spontanée d'un électron par un ion dans un état  $\zeta''$  doublement excité, selon :



avec le processus inverse qui est la capture diélectronique. Le processus Auger est en compétition avec la désexcitation radiative, et l'emporte pour le cas de numéros atomiques faibles.

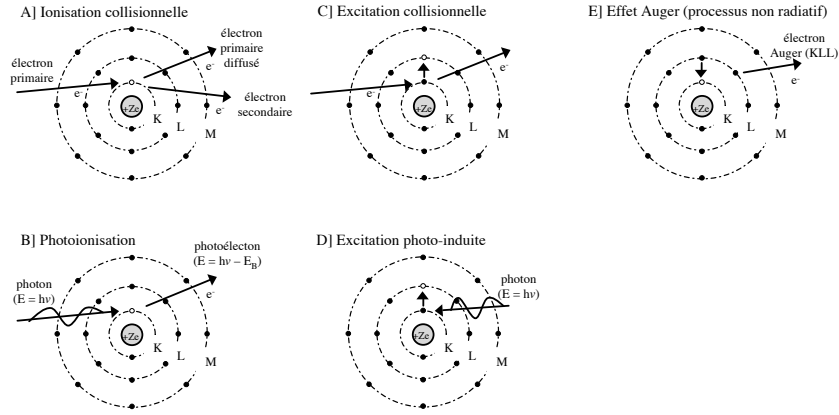
La figure 1.10 présente les schémas correspondant aux processus directs décrits ici.

Un modèle atomique doit pouvoir rendre compte de la population de tous les différents états qui caractérisent les atomes et ions présents, à l'aide des probabilités de transition des différents mécanismes présentés.

Sous certaines conditions, des simplifications peuvent être apportées, et la résolution est alors simplifiée :

- À haute densité, l'équilibre thermodynamique local (ETL) suppose que toutes les lois de distribution de l'équilibre thermodynamique sont valables localement, et les populations des niveaux pour chaque particule sont décrites par la statistique de Saha-Boltzmann.
- À faible densité, l'équilibre coronal suppose que les taux de désexcitation radiative sont supérieurs aux taux d'excitation collisionnelle.

Cependant, dans le cadre général, tous les processus doivent être pris en compte. Les codes de simulation prenant en compte tous les processus sont dits collisionnels-radiatifs.



**Fig. 1.10:** Schémas des processus relatifs à l'ionisation par collision (en A), l'ionisation par photon (en B), l'excitation par collision (en C), l'excitation par photon (en D) ainsi que l'effet Auger (en E).

Ces codes doivent calculer la population de chaque niveau et pour chaque espèce ionique. Une équation de population (comportement temporel) pour un niveau d'une espèce ionique de charge  $Z$  est du type :  $\frac{\partial n_Z}{\partial t} = (\text{taux de peuplement}) - (\text{taux de dépeuplement})$ . Le nombre d'équations correspond ainsi au nombre de niveaux, et aux nombres de degrés d'ionisation différents. Le nombre de niveaux pouvant atteindre quelques millions pour les atomes de numéro atomique les plus élevés, la difficulté vient de la résolution du nombre d'équations.

Le code TRANSPEC est un code collisionnel-radiatif qui permet de résoudre ces équations, spécialement pour les niveaux qui nous intéressent ici, correspondant aux raies de couche K, dont nous cherchons à obtenir le spectre. Ce code est présenté dans la section suivante.

#### 1.4.2.2 Description du code

Le code TRANSPEC prend en considération tous les processus précédents, que le phénomène soit initié par une collision ou un photon, ou spontané. Ce code monodimensionnel, développé par O. Peyrusse [Peyrusse 92], est spécialement dédié à l'analyse spectroscopique, notamment le calcul des raies de couche K, de plasmas chauds non-stationnaires et inhomogènes.

On peut mettre en exergue différentes hypothèses qui sous-tendent ce code :

- Ce code a été conçu sous l'hypothèse de l'équilibre thermique des électrons. Les électrons libres sont distribués selon une maxwellienne : la température  $T_e$  est ainsi bien définie.
- Ce code étant utilisé préférentiellement pour de la spectroscopie de couche K, les ions qui sont à considérer sont ceux qui ont 1, 2 ou 3 électrons liés : les ions hydrogénoïdes, héliumoïdes et lithiumoïdes. Les autres ions sont décrits de manière moins précise, en limitant la description à des configurations ou des superconfigurations.
- Toutes les transitions autres que "détaillées" sont prises en compte par une approche

en bloc de niveaux (configurations ou superconfigurations) dont les caractéristiques sont réduites à une position et une variance. De même, les transitions entre ces blocs de niveaux sont aussi caractérisées par une position moyenne et une variance (technique U/STA pour *Unresolved/Super Transition Array*).

Le cadre d'utilisation de TRANSPEC est relativement large : appliqué aux plasmas chauds (énergie allant d'une dizaine d'eV à plusieurs milliers d'eV), il peut considérer plusieurs couches de plasma selon un axe spatial, pour différents pas de temps. Il faut alors lui indiquer la densité électronique  $n_e$  et la température électronique  $T_e$  des différentes couches, l'épaisseur de ces couches ainsi que la vitesse moyenne qui leur est associée, pour chaque pas de temps. Ce code travaille ainsi en post-processeur avec des grandeurs que peuvent fournir des codes hydrodynamiques.

Le code TRANSPEC fonctionne en plusieurs étapes, que l'on peut décrire comme suit :

- On vient de le voir, la première étape consiste à intégrer les données fournies par un code hydrodynamique :  $n_i$  et/ou  $n_e$ ,  $T_e$ ,  $T_i$ , vitesse et épaisseur des couches de plasma, puis à calculer la population des différents niveaux.
- La deuxième étape consiste à calculer l'émissivité et l'opacité pour chacune des couches de plasma.
- La troisième et dernière étape consiste à obtenir l'émission totale, par la solution de l'équation de transfert radiatif, en sommant les contributions de chacune des couches.

Nous pouvons compléter la description faite ici du code en signalant que l'effet Stark peut être pris en compte de façon précise sur les raies de couche K [Gilles *et al.* 95]. Notons que cet effet étant approximé par une relation en  $1/Z$ , il est négligeable pour les numéros atomiques importants. Nous pouvons noter également la possibilité d'une prise en compte d'une seconde espèce ionique, comme c'est le cas lors de plasma dopé par des traceurs (argon dans du deutérium-tritium par exemple). Par ailleurs, pour les numéros atomiques élevés, un code indépendant (appelé AVERROËS) génère des données atomiques moyennes couplant des configurations ou des superconfigurations. Ce code permet de pallier un manque de connaissance du grand nombre de données atomiques et permet au code Transpec de simuler des spectres de numéros atomiques élevés.

## 1.5 Conclusion

Nous avons vu dans ce chapitre les différents résultats concernant les agrégats soumis à un champ laser intense. Une forte absorption de l'énergie permet d'obtenir de fortes températures électroniques et une explosion violente de l'agrégat. L'agrégat génère ainsi des particules énergétiques et émet un rayonnement, pouvant aller jusqu'au domaine multi-keV. Différents modèles sont proposés, mais ils rendent compte difficilement de toutes les observations, notamment le degré d'ionisation ou encore le rayonnement X. Les modèles nanoplasmas paraissent toutefois les mieux adaptés. Un modèle a été développé au laboratoire à partir des hypothèses présentées par Ditmire.

Les résultats expérimentaux relatifs au rayonnement X obtenus semblent parfois contradictoires, notamment concernant la durée du rayonnement. L'équipe a été amenée à réali-

---

ser un ensemble cohérent de mesures pour présenter un corpus de données expérimentales unifiées. C'est dans ce cadre que nous avons développé une instrumentation adaptée à la mesure de spectres X résolus en temps, permettant d'étudier plus précisément la dynamique de l'interaction, du rayonnement X émis particulièrement, comme présenté dans les chapitres suivants.



# Bibliographie Chapitre 1

- [Abdallah, Jr. *et al.* 03] Abdallah, Jr. J., Junkel-Vives G.C., Faenov A.Ya., Skobelev I.Yu., Pikuz T.A., Magunov A.I., Blasco F., Bonte C., Dorchies F., Caillaud T., Salin C. et Stenz C.,  
*Time-dependent study of K-shell satellite line structure from L-shell ions in ultra-short laser argon cluster experiments*, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer **81** (2003), 3–12.
- [Ammosov *et al.* 86] Ammosov M.V., Delone N.B. et Krainov V.P.,  
*Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field*, Soviet Physics - JETP **64** (1986), no. 6, 1191–1194.
- [Audebert *et al.* 02] Audebert P., Shepherd R., Fournier K.B., Peyrusse O., Price D., Lee R., Springer P., Gauthier J.-C. et Klein L.,  
*Heating of thin foils with a relativistic-intensity short-pulse laser*, Phys. Rev. Lett. **89** (2002), no. 26, 265001.
- [Becker *et al.* 56] Becker E.W., Bier K. et Henkes W.,  
*Strahlen aus kondensierten Atomen und Molekeln im Hochvakuum*, Zeit. für Phys (1956), 333–338.
- [Boyer *et al.* 85] Boyer K. et Rhodes C.K.,  
*Atomic inner-shell excitation induced by coherent motion of outer-shell electrons*, Phys. Rev. Lett. **54** (1985), no. 14, 1490–1493.
- [Boyer *et al.* 94] Boyer K., Thompson B.D., McPherson A. et Rhodes C.K.,  
*Evidence for coherent electron motions in multiphoton x-ray production from Kr and Xe clusters*, J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **27** (1994), 4373–4389.
- [Brantov *et al.* 03] Brantov A., Rozmus W., Sydora R., Capjack C.E., Bychenkov V.Yu. et Tikhonchuk V.T.,  
*Enhanced inverse bremsstrahlung heating rates in a strong laser field*, Phys. Plasmas **10** (2003), no. 8, 3385–3396.
- [Bréchignac *et al.* 93] Bréchignac C., Cahuzac Ph., Leygnier J. et Sarfati A.,  
*Optical response of large lithium clusters : Evolution toward the bulk*, Phys. Rev. Lett. **70** (1993), no. 13, 2036–2039.



- [Brewczyk *et al.* 98] Brewczyk M., Clark C.W., Lewenstein M. et Rzażewski K., *Stepwise explosion of atomic clusters induced by a strong laser field*, Phys. Rev. Lett. **80** (1998), no. 9, 1857–1860.
- [Caillaud *et al.* 03] Caillaud T., Blasco F., Dorchies F., Glinec Y., Stenz Ch. et Stevefelt J., *Experimental study of K-shell x-ray emission from argon clusters irradiated by an ultra-intense laser pulse*, NIM B **205** (2003), 329–333.
- [Caillaud *et al.* 06] Caillaud T., Blasco F., Bonté C., Dorchies F. et Mora P., *Study of intense femtosecond laser propagation into a dense Ar gas and cluster jet*, Phys. Plasmas **13** (2006), 033105.
- [Caillaud 04] Caillaud T., *Etude expérimentale de l'interaction laser-agrégats : Absorption, Chauffage, Emission X - Vers la réponse de l'agrégat unique*, Thèse de doctorat, Université Bordeaux I, Septembre 2004.
- [Cavaliere *et al.* 76] Cavaliere A. et Messina A., *Propagation of blast waves*, Astrophysical Journal **209** (1976), no. 2, 424–428.
- [David *et al.* 04] David N., Spence D.J. et Hooker S.M., *Molecular-dynamic calculation of the inverse-bremsstrahlung heating of non-weakly-coupled plasmas*, Phys. Rev. E **70** (2004), 056411.
- [David *et al.* 05] David N. et Hooker S.M., *Effects of polarization on inverse bremsstrahlung heating of a plasma*, Phys. Rev. E **72** (2005), 036402.
- [Deiss *et al.* 06] Deiss C., Rohringer N., Burgdörfer J., Lamour E., Prigent C., Rozet J.-P. et Vernhet D., *Laser-Cluster Interaction : X-Ray Production by Short Laser Pulses*, Phys. Rev. Lett. **96** (2006), 013203.
- [Ditmire *et al.* 95] Ditmire T., Donnelly T., Falcone R.W. et Perry M.D., *Strong x-ray emission from high-temperature plasmas produced by intense irradiation of clusters*, Phys. Rev. Lett. **75** (1995), no. 17-23, 3122–3125.
- [Ditmire *et al.* 96] Ditmire T., Donnelly T., Rubenchik A.M., Falcone R.W. et Perry M.D., *Interaction of intense laser pulses with atomic clusters*, Phys. Rev. A **53** (1996), no. 5, 3379–3402.
- [Ditmire *et al.* 97] Ditmire T., Tisch J.W.G., Springate E., Mason M.B., Hay N., Marangos J.P. et Hutchinson M.H.R., *High energy ion explosion of atomic clusters : Transition from molecular to plasma behavior*, Phys. Rev. Lett. **78** (1997), no. 14, 2732–2735.
- [Ditmire *et al.* 98] Ditmire T., Gumbrell E.T., Smith R.A., Djaoui A. et Hutchinson M.H.R.,

- Time-resolved study of nonlocal electron heat transport in high temperature plasmas*, Phys. Rev. Lett. **80** (1998), no. 4, 720–723.
- [Ditmire *et al.* 99] Ditmire T., Zweiback J., Yanovsky V.P., Cowan T.E., Hays G. et Wharton K.B.,  
*Nuclear fusion from explosions of femtosecond laser-heated deuterium clusters*, Nature **398** (1999), 489–491.
- [Ditmire 98] Ditmire T.,  
*Simulation of exploding clusters ionized by high-intensity femtosecond laser pulses*, Phys. Rev. A **57** (1998), no. 6, R4094–R4097.
- [Dobosz *et al.* 97] Dobosz S., Lezius M., Schmidt M., Meynadier P., Perdrix M., Normand D., Rozet J.-P. et Vernhet D.,  
*Absolute kev photon yields from ultrashort laser-field-induced hot nanoplasmas*, Phys. Rev. A **56** (1997), no. 4, R2526–R2529.
- [Dobosz 98] Dobosz Sandrine,  
*Interaction d'agrégats de gaz rares avec un champ laser intense*, Thèse de doctorat, Université Paris 13 – Institut Galilée, 30 Novembre 1998.
- [Donnelly *et al.* 96] Donnelly T.D., Ditmire T., Neuman K., Perry M.D. et Falcone R.W.,  
*High-Order Harmonic Generation in Atom Clusters*, Phys. Rev. Lett. **76** (1996), no. 14, 2472–2475.
- [Dorchies *et al.* 03] Dorchies F., Blasco F., Caillaud T., Stevefelt J., Stenz C., Boldarev A.S. et Gasilov V.A.,  
*Spatial distribution of cluster size and density in supersonic jets as targets for intense laser pulses*, Phys. Rev. A **68** (2003), 023201–1–8.
- [Dorchies *et al.* 05] Dorchies F., Caillaud T., Blasco F., Bonté C., Jouin H., Micheau S., Pons B. et Stevefelt J.,  
*Investigation of laser-irradiated Ar cluster dynamics from K-shell x-ray emission measurements*, Phys. Rev. E **71** (2005), 066410–1–8.
- [Eloy *et al.* 01] Eloy M., Azambuja R., Mendonça J.T. et Bingham R.,  
*Interaction of ultrashort high-intensity laser pulses with atomic clusters*, Phys. Plasmas **8** (2001), no. 3, 1084–1086.
- [Fukuda *et al.* 03] Fukuda Y., Yamakawa K., Akahane Y., Aoyama M., Inoue N., Ueda H., Abdallah Jr J., Csanak G., Faenov A.Ya., Magunov A.I., Pikuz T.A., Skobelev I. Yu., Boldarev A.S. et Gasilov V.A.,  
*X-ray study of microdroplet plasma formation under the action of superintense laser radiation*, JETP Lett. **78** (2003), no. 3, 115–118.
- [Gilles *et al.* 95] Gilles D. et Peyrusse O.,  
*Fast and accurate line shape modeling of the H- and He-like lyman series for radiative transfer calculations in plasmas*, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer **53** (1995), no. 6, 647–661.

- [Grillon *et al.* 02] Grillon G., Balcou Ph., Chambaret J.-P., Hulin D., Martino J., Moustazis S., Notebaert L., Pittman M., Pussieux Th., Rousse A., Rousseau J.-Ph., Sebban S., Sublemontier O. et Schmidt M., *Deuterium-deuterium fusion dynamics in low-density molecular-cluster jets irradiated by intense ultrafast laser pulses*, Phys. Rev. Lett. **89** (2002), no. 6, 065005.
- [Hagena *et al.* 72] Hagena O.F. et Obert W., *Cluster formation in expanding supersonic jets : Effect of pressure, temperature, nozzle size, and test gas*, J. Chem. Phys. **56** (1972), no. 5, 1793–1802.
- [Hagena 81] Hagena O.F., *Nucleation and growth of clusters in expanding nozzle flows*, Surface Science **106** (1981), no. 1-3, 101–116.
- [Hilscher *et al.* 01] Hilscher D., Berndt O., Enke M., Jahnke U., Nickles P.V., Ruhl H. et Sandner W., *Neutron energy spectra from the laser-induced  $d(d,n)^3\text{He}$  reaction*, Phys. Rev. E **64** (2001), 016414.
- [Honda *et al.* 00] Honda H., Miura E., Katsura K., Takahashi E. et Kondo K., *Evidence for wavelength dependence of Xe M-shell emission from clusters*, Phys. Rev. A **61** (2000), 023201.
- [Hu *et al.* 97] Hu S.X. et Xu Z.Z., *Dynamics of an intense laser-driven multiwell system : A model of ionized clusters*, Phys. Rev. A **56** (1997), no. 5, 3916–3922.
- [Issac *et al.* 04] Issac R.C., Vieux G., Ersfeld B., Brunetti E., Jamison S.P., Gallacher J., Clark D. et Jaroszynski D.A., *Ultra hard x rays from krypton clusters heated by intense laser fields*, Phys. Plasmas **11** (2004), no. 7, 3491–3496.
- [Johnston *et al.* 73] Johnston T.W. et Dawson J.M., *Correct values for high-frequency power absorption by inverse bremsstrahlung in plasmas*, Phys. of Fluids **16** (1973), no. 5, 722.
- [Kondo *et al.* 97] Kondo K., Borisov A.B., Jordan C., McPherson A., Schroeder W.A., Boyer K. et Rhodes C.K., *Wavelength dependence of multiphoton-induced Xe(M) and Xe(L) emissions from Xe clusters*, J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **30** (1997), 2707–2716.
- [Kostyukov 01] Kostyukov I.Yu., *Inverse-bremsstrahlung absorption of an intense laser field in cluster plasma*, JETP Lett. **73** (2001), no. 8, 393–397.
- [Krainov *et al.* 01] Krainov V.P. et Roshchupkin A.S., *Dynamics of coulomb explosion of large Xe clusters irradiated by a super-intense ultra-short laser pulse*, J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **34** (2001), no. L297-L303.
- [Kumarappan *et al.* 01] Kumarappan V., Krishnamurthy M., Mathur D. et Tribedi L.C., *Effect of laser polarization on x-ray emission from  $\text{Ar}_n$  ( $n =$*

- 200-10<sup>4</sup>) clusters in intense laser fields*, Phys. Rev. A **63** (2001), 023203.
- [Lamour *et al.* 05] Lamour E., Prigent C., Rozet J.P., Vernhet D., Gobert O., Meynadier P., Normand D. et Perdrix M.,  
*Source X par agrégats : contrôle et optimisation des paramètres gouvernant l'interaction laser de puissance - agrégats de gaz rare*, J. Phys. IV **127** (2005), 3–8.
- [Landau *et al.* ] Landau L. et Lifchitz E.
- [Larsson *et al.* 99] Larsson J. et Sjögren A.,  
*Evaluation of laser-irradiated Ar clusters as a source for time-resolved X-ray studies*, Rev. Sci. Instrum. **70** (1999), no. 5, 2253–2256.
- [Last *et al.* 97] Last I., Schek I. et Jortner J.,  
*Energetics and dynamics of Coulomb explosion of highly charged clusters*, J. Chem. Phys. **107** (1997), no. 17, 6685–6692.
- [Lezius *et al.* 97] Lezius M., Dobosz S., Normand D. et Schmidt M.,  
*Hot nanoplasmas from intense laser irradiation of argon clusters*, J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **30** (1997), L251–L258.
- [Lotz 68] Lotz W.,  
*Electron-impact ionization cross-sections and ionization rate coefficients for atoms and ions from hydrogen to calcium*, Zeitschrift für Physik A Hadrons and Nuclei **216** (1968), no. 3, 241–247.
- [McPherson *et al.* 93] McPherson A., Luk T.S., Thompson B.D., Boyer K. et Rhodes C.K.,  
*Multiphoton-induced x-ray emission and amplification from clusters*, Applied Physics B : Lasers and Optics **57** (1993), no. 5, 337–347.
- [McPherson *et al.* 94] McPherson A., Luk T.S., Thompson B.D., Borisov A.B., Shiryayev O.B., Chen X., Boyer K. et Rhodes C.K.,  
*Multiphoton induced x-ray emission from Kr clusters on M-shell ( $\sim 100 \text{ \AA}$ ) and L-shell ( $\sim 6 \text{ \AA}$ ) transitions*, Phys. Rev. Lett. **72** (1994), no. 12, 1810–1813.
- [Megi 05] Megi Fabien,  
*Étude théorique d'agrégats soumis à des champs lasers intenses*, Thèse de doctorat, Université Paul Sabatier - Toulouse, 29 Avril 2005.
- [Mendham *et al.* 02] Mendham K.J., Tisch J.W.G., Mason M.B., Hay N., Smith R.A. et Marangos J.P.,  
*Multi-keV proton energies from exploding hydrogen clusters*, J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **35** (2002), 663–670.
- [Micheau 06] Micheau Samuel,  
*à paraître*, Thèse de doctorat, Université Bordeaux I, 2006.

- [Milchberg *et al.* 01] Milchberg H.M., McNaught S.J. et Parra E.,  
*Plasma hydrodynamics of the intense laser-cluster interaction*, Phys. Rev. E **64** (2001), 056402.
- [Miura *et al.* 00] Miura E., Honda H., Katsura K., Takahashi E. et Kondo K.,  
*Soft X-ray emission from noble gas clusters excited by an ultra-short KrF laser pulse*, Appl. Phys. B **70** (2000), no. 783-787.
- [Mora *et al.* 97] Mora P. et Antonsen Jr. T.M.,  
*Kinetic modeling of intense, short laser pulses propagating in tenuous plasmas*, Phys. Plasmas **4** (1997), no. 1, 217–229.
- [Mori *et al.* 01] Mori M., Shiraishi T., Takahashi E., Suzuki H., Sharma L.B., Miura E. et Kondo K.,  
*Extreme ultraviolet emission from Xe clusters excited by high-intensity lasers*, J. Appl. Phys. **90** (2001), no. 7, 3595–3601.
- [Namba *et al.* 06] Namba S., Hasegawa N., Nagashima K., Kawachi T., Kishimoto M., Sukegawa K. et Takiyama K.,  
*Efficient electron heating in nitrogen clusters irradiated with intense femtosecond laser pulses*, Phys. Rev. A **73** (2006), 013205.
- [Parra *et al.* 00] Parra E., Alexeev I., Fan J., Kim K.Y., McNaught S.J. et Milchberg H.M.,  
*X-ray and extreme ultraviolet emission induced by variable pulse-width irradiation of Ar and Kr clusters and droplets*, Phys. Rev. E **62** (2000), no. 5, R5931–R5934.
- [Peyrusse 92] Peyrusse O.,  
*A model for the simulation of nonequilibrium line transfer in laboratory plasmas*, Phys. Fluids **4** (1992), no. 7, 2007–2017.
- [Polishchuk *et al.* 94] Polishchuk A.Ya. et Meyer-Ter-Vehn J.,  
*Electron-ion relaxation in a plasma interacting with an intense laser field*, Phys. Rev. E **49** (1994), no. 1, 663–666.
- [Pretzler *et al.* 98] Pretzler G., Saemann A., Pukhov A., Rudolph D., Schätz T., Schramm U., Thirolf P., Habs D., Eidmann K., Tsakiris G.D., Meyer ter Vehn J. et Witte K.J.,  
*Neutron production by 200 mJ ultrashort laser pulses*, Phys. Rev. E **58** (1998), no. 1, 1165–1168.
- [Purnell *et al.* 94] Purnell J., Snyder E.M., Wei S. et Castleman Jr. A.W.,  
*Ultrafast laser-induced coulomb explosion of clusters with high charge states*, Chem. Phys. Lett. **229** (1994), no. 4-5, 333–339.
- [Rose-Petruck *et al.* 97] Rose-Petruck C., Schafer K.J., Wilson K.R. et Barty C.P.J.,  
*Ultrafast electron dynamics and inner-shell ionization in laser driven clusters*, Phys. Rev. A **55** (1997), no. 2, 1182–1190.
- [Rozet *et al.* 01] Rozet J.-P., Cornille M., Dobosz S., Dubau J., Gauthier J.-C., Jacquemot S., Lamour E., Lezius M., Normand D., Schmidt M. et Vernhet D.,  
*State selective measurements of HCI produced by strong ultra-short laser-clusters interaction*, Physica Scripta - Topical Volumes **T92** (2001), no. 0, 113–118.

- [Rusek *et al.* 00] Rusek M., Lagadec H. et Blenski T.,  
*Cluster explosion in an intense laser pulse : Thomas-fermi model*, Phys. Rev. A **63** (2000), 013203.
- [Sakabe *et al.* 01] Sakabe S., Nishihara K., Nakashima N., Koub J., Shimizu S., Zhakhovskii V., Amitani H. et Satoh F.,  
*The interactions of ultra-short high-intensity laser pulses with large molecules and clusters : Experimental and computational studies*, Phys. Plasmas **8** (2001), no. 5, 2517–2524.
- [Schroeder *et al.* 98] Schroeder W.A., Omenetto F.G., Borisov A.B., Longworth J.W., McPherson A., Jordan C., Boyer K., Kondo K. et Rhodes C.K.,  
*Pump laser wavelength-dependent control of the efficiency of kilovolt x-ray emission from atomic clusters*, J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **31** (1998), 5031–5051.
- [Servol *et al.* 05] Servol M., Quéré F., Bougeard M., Monot P., Martin Ph., Faenov A.Ya., Pikuz T.A., Audebert P., Francucci M. et Petrocelli G.,  
*New target for high-intensity laser-matter interaction : Gravitational flow of micrometer-sized powders*, Rev. Sci. Instrum. **76** (2005), 083105.
- [Shao *et al.* 96] Shao Y.L., Ditmire T., Tisch J.W.G., Springate E., Marangos J.P. et Hutchinson M.H.R.,  
*Multi-keV electron generation in the interaction of intense laser pulses with Xe clusters*, Phys. Rev. Lett. **77** (1996), no. 16, 3343–3346.
- [Shiraishi *et al.* 02] Shiraishi T., Mori M. et Kondo K.,  
*Estimation of the pulse width of x-ray emission from Xe clusters excited by a subpicosecond intense Ti:sapphire laser pulse*, Phys. Rev. A **65** (2002), no. 045201.
- [Springate *et al.* 00] Springate E., Hay N., Tisch J.W.G., Mason M.B., Ditmire T., Hutchinson M.H.R. et Marangos J.P.,  
*Explosion of atomic clusters irradiated by high-intensity laser pulses : Scaling of ion energies with cluster and laser parameters*, Phys. Rev. A **61** (2000), 063201.
- [Springate *et al.* 03] Springate E., Aseyev S.A., Zamith S. et Vrakking M.J.J.,  
*Electron kinetic energy measurements from laser irradiation of clusters*, Phys. Rev. A **68** (2003), 053201.
- [Ter-Avetisyan *et al.* 01] Ter-Avetisyan S., Schnürer M., Stiel H., Vogt U., Radloff W., Karpov W. Sandner W. et Nickles P.V.,  
*Absolute extreme ultraviolet yield from femtosecond-laser-excited Xe clusters*, Phys. Rev. E **64** (2001), 036404.
- [Tisch *et al.* 01] Tisch J.W.G. et Springate E.,  
*Molecules and Clusters in Intense Laser Fields*, ch. 6 Single-cluster explosions and high-harmonic generations in cluster, pp. 177–215, Cambridge University Press, 2001.

- [Tisch *et al.* 97] Tisch J.W.G., Ditmire T., Frasery D.J., Hay N., Mason M.B., Springate E., Marangos J.P. et Hutchinson M.H.R.,  
*Investigation of high-harmonic generation from xenon atom clusters*, J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **30** (1997), L709–L714.
- [Wabnitz *et al.* 02] Wabnitz H., Bittner L., de Castro A.R.B., Döhrmann R., Gürtler P., Laarmann T., Laasch W., Schulz J., Swiderski A., von Haefen K., Möller T., Faatz B., Fateev A., Feldhaus J., Gerth C., Hahn U., Saldin E., Schneidmiller E., Sytchev K., Tiedtke K., Treusch R. et Yurkov M.,  
*Multiple ionization of atom clusters by intense soft x-rays from a freeelectron laser*, Nature **420** (2002), 482–485.
- [Wabnitz 03] Wabnitz Hubertus,  
*Interaction of intense VUV radiation from a Free-Electron Easer with rare gas atoms and clusters*, Dissertation zur Erlangung des Doktorgrades des Fachbereichs Physik, Universität Hamburg, 20 June 2003.
- [Zweiback *et al.* 00a] Zweiback J., Smith R.A., Cowan T.E., Hays G., Wharton K.B., Yanovsky V.P. et Ditmire T.,  
*Nuclear fusion driven by coulomb explosions of large deuterium clusters*, Phys. Rev. Lett. **84** (2000), no. 12, 2634–2637.
- [Zweiback *et al.* 00b] Zweiback J., Cowan T.E., Smith R.A., Hartley J.H., Howell R., Steinke C.A., Hays G., Wharton K.B., Crane J.K. et Ditmire T.,  
*Characterization of fusion burn time in exploding deuterium cluster plasmas*, Phys. Rev. Lett. **85** (2000), no. 17, 3640–3643.
- [Zweiback *et al.* 01] Zweiback J. et Ditmire T.,  
*Femtosecond laser energy deposition in strongly absorbing cluster gases diagnosed by blast wave trajectory analysis*, Phys. Plasmas **8** (2001), no. 10, 4545–4550.
- [Zweiback *et al.* 99] Zweiback J., Ditmire T. et Perry M.D.,  
*Femtosecond time-resolved studies of the dynamics of noble-gas cluster explosions*, Phys. Rev. A **59** (1999), no. 5, R3166–R3169.

# Chapitre 2

## Dispositif expérimental

### Sommaire

---

<b>2.1</b>	<b>Présentation schématique . . . . .</b>	<b>59</b>
<b>2.2</b>	<b>La chaîne laser . . . . .</b>	<b>59</b>
2.2.1	Introduction: technique CPA & Titane:Saphir . . . . .	60
2.2.2	Caractérisation . . . . .	62
2.2.2.1	Durée des impulsions . . . . .	62
	Spectre . . . . .	62
	Trace d'autocorrélation . . . . .	63
	Contrôle de la durée laser . . . . .	64
2.2.2.2	Contraste temporel . . . . .	66
	Contraste picoseconde . . . . .	66
	Contraste nanoseconde . . . . .	66
2.2.2.3	Caractérisation spatiale . . . . .	68
	Tache focale . . . . .	68
	Longueur de Rayleigh . . . . .	68
2.2.2.4	Éclairement sur cible . . . . .	69
	Répartition de l'énergie dans le faisceau . . . . .	69
	Énergie sur cible . . . . .	69
	Calcul de l'éclairement . . . . .	70
2.2.3	Bilan des caractéristiques du laser . . . . .	70
<b>2.3</b>	<b>Le jet d'agrégats . . . . .</b>	<b>71</b>
2.3.1	Introduction . . . . .	71
2.3.2	Production d'agrégats de gaz rare . . . . .	72
2.3.3	Caractérisation . . . . .	73
2.3.3.1	Interférométrie Mach-Zehnder . . . . .	74
2.3.3.2	Diffusion Rayleigh . . . . .	76
2.3.3.3	Modélisation . . . . .	78
2.3.4	Bilan des caractéristiques des agrégats . . . . .	80
<b>2.4</b>	<b>Les diagnostics X . . . . .</b>	<b>81</b>
2.4.1	Introduction . . . . .	81

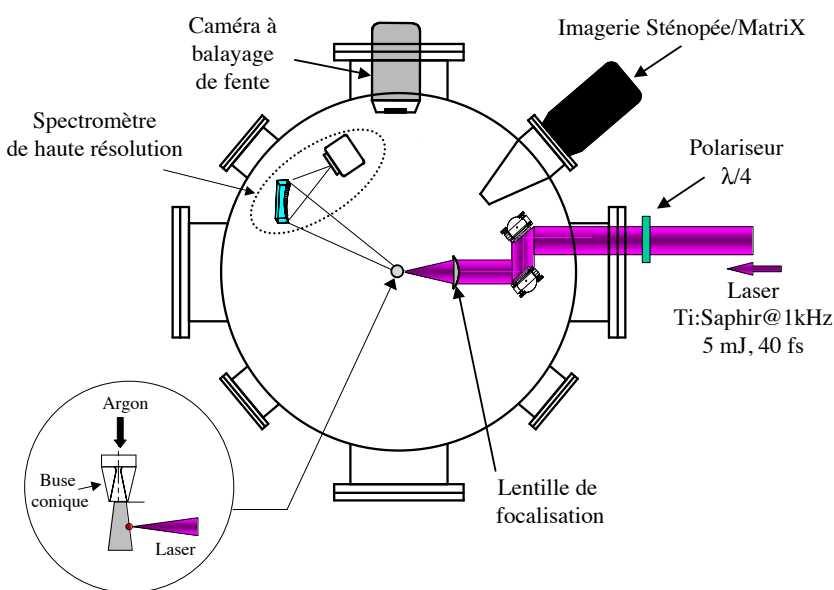


2.4.2	Imagerie sténopé . . . . .	81
2.4.3	Spectroscopie large bande: "MatriX" . . . . .	83
2.4.4	Spectroscopie de haute résolution . . . . .	85
2.4.5	Détection X ultra-rapide . . . . .	90
<b>Bibliographie Chapitre 2 . . . . .</b>		<b>93</b>

---

## 2.1 Présentation schématique

La propagation du faisceau impose de réaliser les expériences dans une enceinte sous vide. Le dispositif expérimental est représenté en figure 2.1. Nous nous proposons de détailler dans ce chapitre les différents éléments le constituant. Le faisceau laser (Cf. section 2.2), conditionné spectralement et temporellement en amont, est focalisé dans l'enceinte à l'aide d'une lentille de focale de 200 mm. Le plan focal est situé sous le jet d'agrégats (Cf. section 2.3). L'interaction du laser avec les agrégats crée un plasma, qui est le siège d'une émission de photons. Pour détecter le rayonnement X, une série d'instruments a été développée et installée en routine : sténopé, spectromètre X matriciel ("MatriX") à grande gamme spectrale, spectromètre de haute résolution spectrale et caméra à balayage de fente (Cf. section 2.4.)



**Fig. 2.1:** Schéma de l'agencement du dispositif expérimental.

## 2.2 La chaîne laser

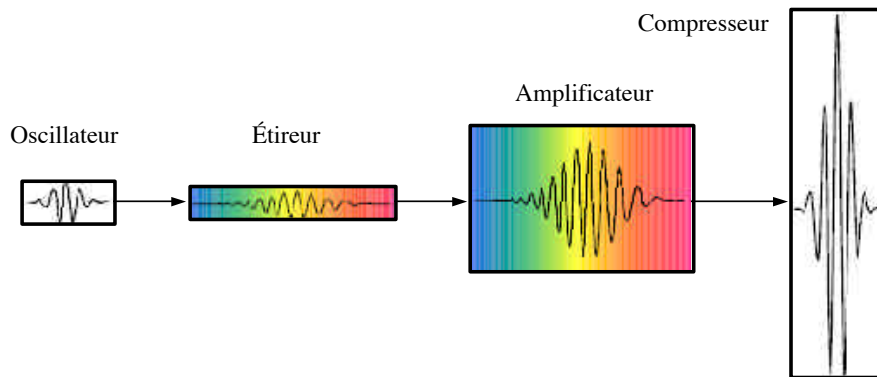
Lors du développement des chaînes laser, les performances n'ont cessé d'évoluer, jusqu'à rencontrer le seuil d'endommagement des matériaux lors de la propagation du faisceau dans les différents éléments de la chaîne. Afin de qualifier le laser par rapport à ce seuil, nous pouvons employer l'expression de l'éclairement, relatif à la puissance instantanée par unité de surface (aussi désigné par le terme intensité et exprimé en  $\text{W}/\text{cm}^2$ ). Une technique permettant de s'affranchir de ce seuil a été développée : la technique dite CPA ("Chirp Pulse Amplification" pour Amplification à Dérive de Fréquence). La chaîne laser du CELIA a été développée d'après ce schéma. Nous nous proposons d'exposer brièvement cette technique, puis de présenter les caractéristiques des impulsions laser délivrées : en durée, contraste temporel, énergie et focalisation.

### 2.2.1 Introduction : technique CPA & Titane :Saphir

La chaîne laser "Aurore kHz" du CELIA a été conçue par Vincent Bagnoud et François Salin [Bagnoud *et al.* 00]. Sa construction s'est achevée en 1999, avec deux particularités :

- D'une part, des cristaux de saphir dopés au titane ( $\text{Ti}^{3+} : \text{Al}_2\text{O}_3$ ) ont été choisis comme milieux amplificateurs. Ce matériau a la particularité d'avoir une grande largeur d'émission spectrale (indispensable pour obtenir des impulsions de courtes durées), un seuil de dommage élevé et une section efficace d'émission (ou de gain) élevée notamment.
- D'autre part, la technique d'amplification à dérive de fréquence (CPA pour "*Chirp Pulse Amplification*") a été utilisée pour contourner le problème de seuil d'endommagement, en réalisant l'amplification en énergie après avoir élargi temporellement l'impulsion.

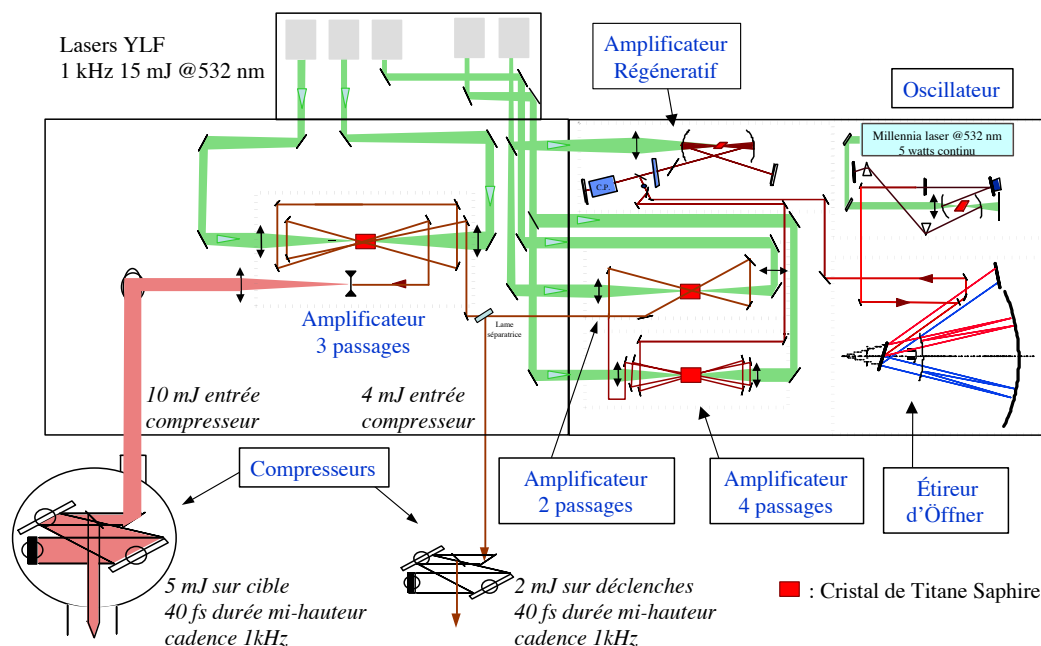
La figure 2.2 présente succinctement la méthode : une impulsion est tout d'abord étirée temporellement, l'énergie contenue dans l'impulsion est alors amplifiée, puis enfin l'impulsion est comprimée temporellement. Ces étapes sont présentées en figure 2.2.



**Fig. 2.2:** Schéma de principe de la technique CPA.

Un schéma détaillé de la chaîne laser est présenté en figure 2.3. Un oscillateur délivre un train d'impulsions de durée de l'ordre de 20-25 fs à une cadence élevée (78 MHz), avec une largeur spectrale de près de 50 nm centré sur 800 nm, contenant une énergie de 1,5 nJ par impulsion. Le laser de pompe apportant l'énergie aux impulsions délivrées par l'oscillateur est basé sur un cristal de vanadate d'yttrium dopé au néodyme ( $\text{Nd} : \text{YVO}_4$ ).

La première étape de la technique CPA consiste à utiliser un étireur (Cf. Fig. 2.4(a)), qui permet d'étendre la durée de l'impulsion principale à près de 200 ps. On voit sur la figure de l'étireur que l'inclinaison du réseau par rapport à l'axe constitué par le centre des deux miroirs (M) induit une différence de marche sur les chemins optiques menant au dièdre (D). D'un point de vue spectral, les basses fréquences (rouge) sont situées à l'avant de l'impulsion, tandis que les hautes fréquences sont sur l'arrière de l'impulsion. L'impulsion ayant une durée presque 10.000 fois plus grande, la puissance instantanée est moindre, et le seuil de dommage n'est alors pas atteint dans les milieux traversés par la suite.



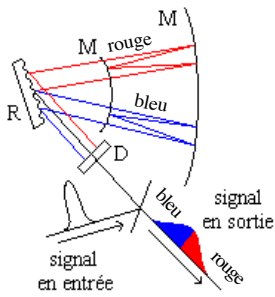
**Fig. 2.3:** Schéma du laser kHz au CELIA.

Une impulsion est sélectionnée toutes les millisecondes par une cellule de Pockels pour être amplifiée par un amplificateur régénératif (Cf. Fig. 2.4(b)), où un gain de l'ordre de  $10^6$  est réalisé. L'impulsion est contrainte à effectuer plusieurs passages dans le cristal (28 passages selon l'architecture utilisée), et gagne de l'énergie à chaque passage dans le cristal. L'apport en énergie dans le cristal est assuré par la focalisation d'un faisceau dit de pompe, focalisé par une lentille (L) sur le cristal. Après les multiples passages, la cellule de Pockels laisse l'impulsion sortir de la cavité, avec une énergie de l'ordre de  $700 \mu\text{J}$ . En sortie d'amplification régénérative, l'impulsion passe par une porte optique à base d'une cellule de Pockels et de deux polariseurs croisés, ce qui permet d'améliorer le contraste temporel de l'impulsion.

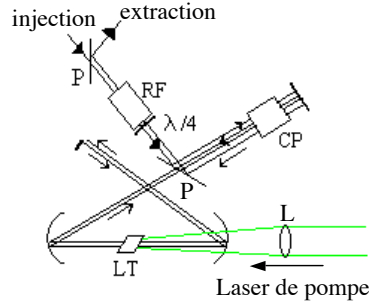
Pour amplifier davantage, on utilise l'amplification multipassage. Ceci consiste à faire gagner à l'impulsion principale de l'énergie en passant plusieurs fois dans des cristaux (Ti :Sa), grâce à un jeu de miroirs. Les cristaux ont un apport en énergie assuré par 5 lasers de pompe (YLF), délivrant une puissance de 15 W chacun, pour une longueur d'onde centrée sur 527 nm. L'architecture du laser telle qu'elle était alors correspondait à une succession de différents amplificateurs. Un premier amplificateur 4 passages fait monter l'énergie de l'impulsion principale à 4 mJ. Un second amplificateur 2 passages fait monter l'énergie de l'impulsion principale à 7 mJ. Alors, une lame séparatrice scinde en deux l'impulsion principale, selon 40 % et 60 % de l'énergie. La ligne correspondant aux 40 % d'énergie inclut un amplificateur 3 passages qui permet d'obtenir des impulsions de 10 mJ, tandis que la ligne correspondant aux 60 % de l'énergie délivre des impulsions contenant 4 mJ.

La dernière étape est basée sur le même principe que l'étireur : l'impulsion laser est comprimée temporellement par une différence de marche sur les trajets optiques, dans un

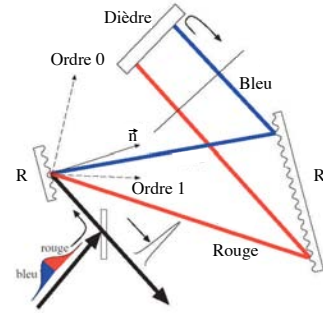
compresseur à réseaux (Cf. Fig. 2.4(c)). Le front avant de l'impulsion, qui correspond aux basses fréquences ("rouge" sur le schéma), a un trajet plus long : en sortie, l'impulsion est finalement "comprimée" temporellement. Cette dernière étape s'effectue sous vide.



(a) Schéma de l'étirateur d'Öffner.  $R$  : réseau,  $M$  : miroir,  $D$  : dièdre.



(b) Schéma de l'amplification régénérative.  $P$  : polariseur,  $RF$  : rotateur de Faraday,  $CP$  : cellule de Pockels,  $LT$  : lentille thermique/cristal,  $L$  : lentille.



(c) Schéma du compresseur à réseaux.  $R$  : réseau.

**Fig. 2.4:** Schémas des différentes étapes constituant l'amplification à dérive de fréquence.

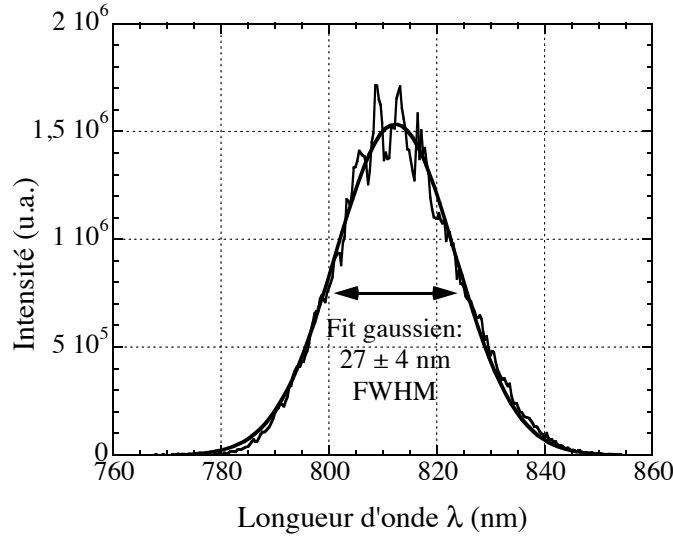
En fin de chaîne, nous possédons deux impulsions laser de 10 et 4 mJ, ayant une durée après compression de l'ordre de 40 fs, à un taux de répétition de 1 kHz. La détermination des différentes caractéristiques des impulsions laser est présentée plus précisément dans la section suivante.

## 2.2.2 Caractérisation

Nous présentons dans cette section les moyens mis en œuvre afin de caractériser les propriétés des impulsions. L'étude de l'interaction laser-matière est en effet très sensible à leurs paramètres : durée, contraste temporel, énergie et éclairage sur cible.

### 2.2.2.1 Durée des impulsions

**Spectre** Le spectre du faisceau laser a été mesuré en sortie de l'amplification régénérative, et un exemple de spectre est présenté en figure 2.5. Le profil spectral est conservé lors de la propagation de l'impulsion à travers les différents éléments de la chaîne laser en aval. Une courbe d'ajustement de profil gaussien nous indique que les longueurs d'onde sont centrées autour de  $\lambda = 812 \pm 5$  nm, avec une largeur à mi-hauteur  $\Delta\lambda$  de  $27 \pm 4$  nm.



**Fig. 2.5:** Exemple de spectre du faisceau laser kHz.

La durée  $\Delta t$  d'une impulsion laser gaussienne est intrinsèquement limitée par la relation suivante, dite limite de Fourier [Joffre 98] :

$$\Delta t \times \Delta \omega \geq 4 \ln 2 \quad (2.1)$$

où  $\Delta t$  et  $\Delta \omega$  désignent respectivement la durée à mi-hauteur et la largeur à mi-hauteur du spectre, exprimée en unités de la pulsation  $\omega$  ( $\text{rad.s}^{-1}$ ).

Aussi, avec  $\Delta \omega = 2\pi c \Delta \lambda / \lambda^2$ , où  $c$  est la vitesse de la lumière dans le vide, nous obtenons  $\Delta \omega = (7,7 \pm 1,2) \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ , et  $\Delta t \geq 36 \pm 5 \text{ fs}$ , qui est la limite physique accessible par le système. On voit avec la relation 2.1 que pour obtenir des impulsions dont la durée est encore plus courte, il faut nécessairement avoir une largeur spectrale plus grande (et/ou être centré sur une longueur d'onde centrale plus petite, ce qui n'est pas réalisable sur la chaîne kHz).

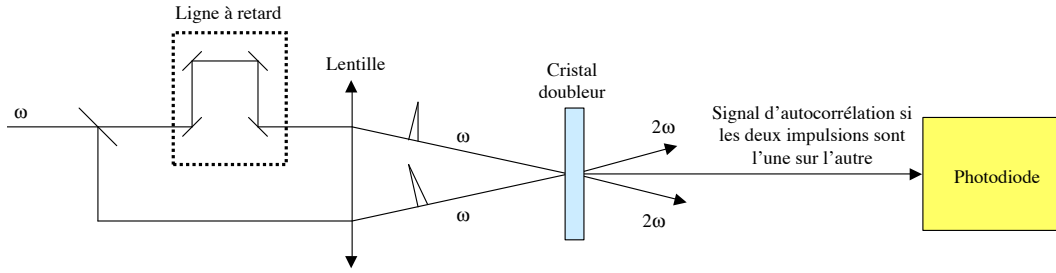
**Trace d'autocorrélation** La durée des impulsions a été mesurée à l'aide d'un autocorrélateur  $2\omega$ . Un schéma de principe est présenté en figure 2.6. Le faisceau principal est subdivisé en deux sous-faisceaux au moyen d'une lame semi-réfléchissante. L'un a un chemin optique fixe, tandis que le second emprunte une ligne à retard. Le délai de cette ligne à retard est variable et varie sinusoidalement à l'aide d'un pot vibrant. Par effet non linéaire dans le cristal (dans notre cas en BBO-Beta Barium Borate), il y a génération d'une harmonique d'ordre deux, dite " $2\omega$ " (le signal est doublé en fréquence) pour chacune des impulsions. Si les deux faisceaux sont superposés au niveau du cristal, il y a création

d'un faisceau  $2\omega$  supplémentaire, émis selon la bissectrice des deux autres faisceaux  $2\omega$ . Une photodiode permet de récolter ce signal émis lors du recouvrement des deux faisceaux. L'intensité mesurée  $I_{2\omega}$  correspond alors à la fonction d'autocorrélation du profil temporel de l'impulsion, dont l'expression est :

$$I_{2\omega}(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} I_{\omega}(t) \times I_{\omega}(t - \tau) dt \quad (2.2)$$

où  $I_{\omega}$  représente l'intensité du signal à mesurer à la pulsation  $\omega$ .

Un résultat de mesure réalisée avec cette méthode est présenté en figure 2.7. Le signal est représenté par des croix. Il a été obtenu en cumulant dix impulsions pour chaque point de mesure. En supposant une enveloppe gaussienne pour l'impulsion laser, on sait remonter de la trace d'autocorrélation au profil temporel de l'impulsion laser, que l'on estime ici à  $40 \pm 4$  fs en largeur à mi-hauteur (FWHM).



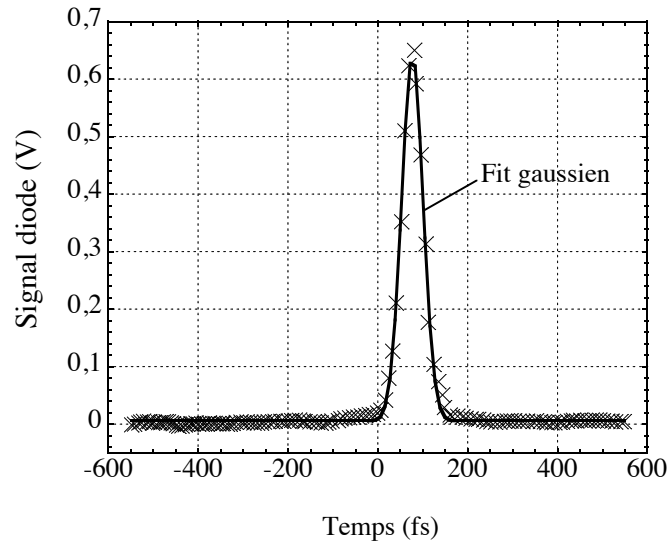
**Fig. 2.6:** Schéma de principe du fonctionnement de l'autocorrélateur  $2\omega$ .

**Contrôle de la durée laser** La durée de l'impulsion dépend *in fine* des réglages du compresseur. Notamment, l'espacement entre les deux réseaux permet de contrôler la compression temporelle des impulsions. L'évolution de la durée de l'impulsion en fonction de l'espacement entre les réseaux est présenté en figure 2.8. Le profil de la durée laser en fonction de l'espacement entre les réseaux est obtenu en réitérant l'opération décrite dans le paragraphe précédent concernant la mesure temporelle du signal, pour chaque point de mesure présenté ici.

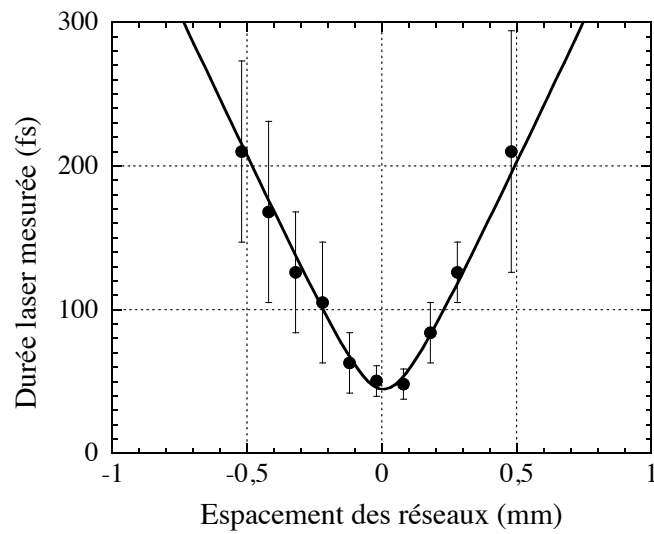
La relation exprimant la durée  $\Delta t$  de l'impulsion laser en fonction de l'espacement entre les réseaux peut se mettre sous la forme suivante :

$$\Delta t(fs) = \Delta t_{min} \times \sqrt{1 + ((x - x_0)/\Delta t_{min} \times Pente)^2} \quad (2.3)$$

avec  $\Delta t_{min}$  la durée de l'impulsion laser au minimum,  $x$  la valeur de l'espacement entre les réseaux,  $x_0$  la valeur de l'espacement entre les réseaux correspondant au minimum de la durée laser (fixée à 0), et  $Pente$  un paramètre, qui correspond au comportement



**Fig. 2.7:** Trace d'autocorrélation obtenue avec l'autocorrélateur  $2\omega$ , en cumulant 10 impulsions pour chaque point. Les données sont représentées sous forme de croix, et la courbe d'ajustement gaussienne en trait plein.



**Fig. 2.8:** Evolution de la durée des impulsions laser en fonction de l'espacement entre les réseaux. Les mesures sont représentées sous forme de ronds, et la courbe d'ajustement par un trait plein.



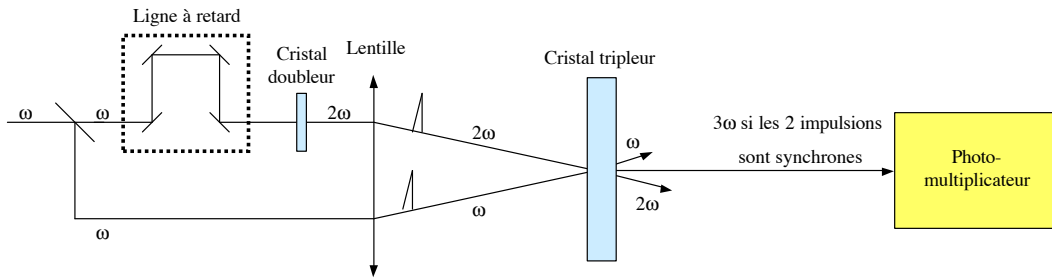
asymptotique de la durée laser. Le comportement asymptotique vérifie une loi de proportionnalité de  $400 \pm 50$  fs/mm. Ainsi, nous pouvons contrôler la durée des impulsions laser lors des campagnes expérimentales par l'espacement entre les réseaux (commandable par des platines de translation placées dans l'enceinte de compression).

### 2.2.2.2 Contraste temporel

**Contraste picoseconde** Des mesures de contraste ont été réalisées à l'aide d'un autocorrélateur  $3\omega$  (voir Fig. 2.9). Le principe de fonctionnement est similaire à l'autocorrélateur  $2\omega$  déjà discuté en sous-section 2.2.2.1, à la différence que le bras qui emprunte une ligne à retard avec un délai variable est doublé en fréquence à l'aide d'un cristal doubleur. Les deux bras, lorsqu'ils se superposent au niveau du cristal tripleur, donnent naissance à du signal  $3\omega$  (harmonique d'ordre trois). Le signal mesuré correspond à une fonction d'autocorrélation du profil temporel de l'impulsion et du profil temporel de l'impulsion doublée en fréquence. L'expression mathématique peut s'exprimer selon :

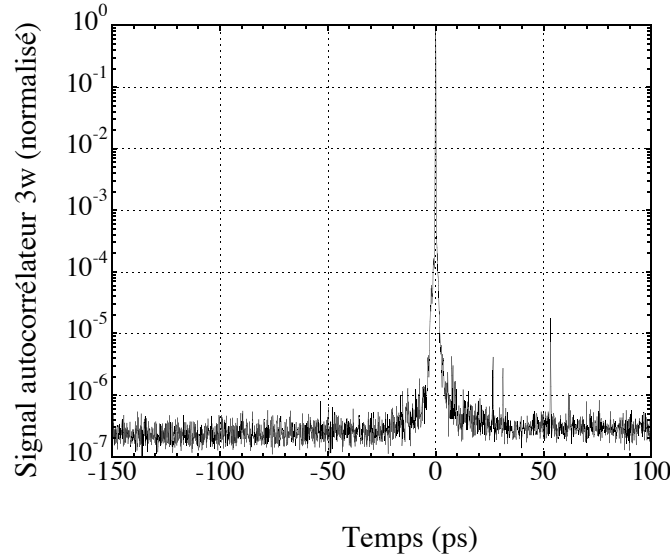
$$I_{3\omega}(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} I_{\omega}(t) \times I_{2\omega}(t - \tau) dt \quad (2.4)$$

Cet instrument (Sequoia de la société Amplitude Technologies) possède une très grande gamme dynamique, pouvant être de l'ordre de  $1 : 10^{10}$  (pied sur pic). On voit sur la figure 2.10 que le contraste, défini par le rapport pied sur pic, est de l'ordre de quelques  $1 : 3.10^6$ , sans qu'il y ait de pré-impulsion observée sur une gamme temporelle de 150 ps précédant l'impulsion. Pour la mesure présentée ici, nous avons pu déterminer le seuil de détection : en bloquant le signal en entrée, le fond était à  $10^{-7}$ . Ainsi, le fond observé ici correspond bien au bruit de fond du signal. Ce fond est attribué à du bruit ASE (pour *Amplified Spontaneous Emission*). Ce fond provient de l'émission spontanée des cristaux de Ti :Sa de la chaîne laser, qui est amplifiée à travers les différents étages d'amplification.



**Fig. 2.9:** Schéma de principe du fonctionnement de l'autocorrélateur  $3\omega$ .

**Contraste nanoseconde** Le contraste peut également être évalué sur des temps plus long. Un oscilloscope rapide suffit pour sonder des échelles de temps de l'ordre de la nanoseconde, en mesurant le signal à l'aide d'une photodiode. On observe en fonction du



**Fig. 2.10:** Trace d'autocorrélation obtenue avec l'autocorrélateur  $3\omega$ .

temps que le signal principal est précédé par des pré-impulsions d'intensité moindre à 4 et 9 ns avant l'intensité maximale. Ces pré-impulsions sont des copies de l'impulsion principale (durée de  $\sim 40$  fs à mi-hauteur) et n'ont pas été parfaitement filtrées par les cellules de Pockels en entrée et en sortie de l'amplification régénérative (Cf. 2.2.1). Le contraste nanoseconde peut en partie être contrôlé par le réglage de l'alignement et du délai appliqué sur les cellules de Pockels. Afin de déterminer l'intensité maximale contenue dans ces pré-impulsions, nous disposons d'un jeu de densités optiques, préalablement calibrées pour la longueur d'onde  $\lambda = 810$  nm. En mesurant le signal des pré-impulsions à l'oscilloscope, puis de l'impulsion principale en appliquant un filtre composé de densités optiques, nous obtenons directement le rapport pied sur pic. Au meilleur réglage des cellules de Pockels, nous avons mesuré des contrastes  $C_{9ns}$  et  $C_{4ns}$  à 9 et 4 ns, respectivement de  $1 : 3 \cdot 10^4$  et  $1 : 2 \cdot 10^4$ .

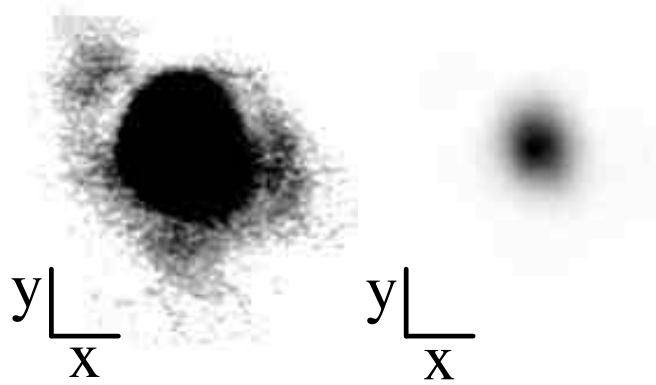
Ce contraste est de moins bonne qualité que celui évalué sur des temps de l'ordre de la picoseconde. C'est lui qui a le plus d'incidence sur l'expérience. Le seuil d'ionisation de l'argon est voisin de  $10^{14}$  W.cm $^{-2}$ . Nous avons déjà observé qu'il s'agissait aussi de l'intensité seuil d'une pré-impulsion conduisant à la destruction des agrégats avant l'impulsion principale [Dorchies *et al.* 05]. L'intensité maximale accessible avec le laser est de l'ordre de  $10^{17}$  W.cm $^{-2}$  (Cf. section 2.2.2.4). Il suffit donc de contrôler à chaque expérience que le contraste nanoseconde reste meilleur que  $1 : 10^3$ , pour assurer une interaction entre l'impulsion laser principale avec des agrégats non détruits.

### 2.2.2.3 Caractérisation spatiale

**Tache focale** La caractérisation spatiale du faisceau proche du foyer est importante pour déterminer l'éclairement sur cible.

La taille de la tache focale est déterminée en imageant le plan focal du faisceau à l'aide d'un objectif de microscope. La tache focale est présentée sur la figure 2.11 telle qu'elle est mesurée avec une caméra CCD. L'étalonnage des axes spatiaux de cette image s'effectue en réalisant l'acquisition de deux images, l'objectif de microscope étant décalé dans le plan focal par un écart déterminé selon chacun des deux axes. Cette méthode nous donne une correspondance pour cette image de  $0,34 \pm 0,02 \mu\text{m}$  par pixel selon l'axe  $x$ , et de  $0,17 \pm 0,03 \mu\text{m}$  par pixel selon l'axe  $y$ . On en déduit une valeur du rayon en  $1/e$  :  $\sigma_{0_{1/e}} \sim 4,5 \pm 0,8 \mu\text{m}$ , valable selon les deux axes.

Par ailleurs, nous pouvons noter toujours à partir de cette image que l'énergie n'est pas entièrement concentrée dans la tache focale, mais que de l'énergie se retrouve dispersée autour de la tache centrale, sous forme de halo (voir plus loin).



**Fig. 2.11:** Image de tache focale. Échelle :  $10 \mu\text{m}$  selon chacun des deux segments  $x$  et  $y$  indiqués. La même tache focale est indiquée à gauche et à droite, avec des niveaux de contraste et de luminosité différents. À gauche : halo autour de la tache focale. À droite : la tache est bien circulaire.

**Longueur de Rayleigh** Pour déterminer les caractéristiques spatiales du faisceau, focalisé au moyen d'une lentille de focale de  $200 \text{ mm}$ , on l'image à différentes positions selon l'axe de propagation. Ceci est réalisé en laissant fixe l'objectif et faisant varier la position relative de focalisation en déplaçant la lentille à l'aide d'une platine de translation. La relation entre la taille  $w$  du faisceau et la position  $z$  selon l'axe de propagation, dans le cadre d'une impulsion de profil gaussien, peut s'écrire :

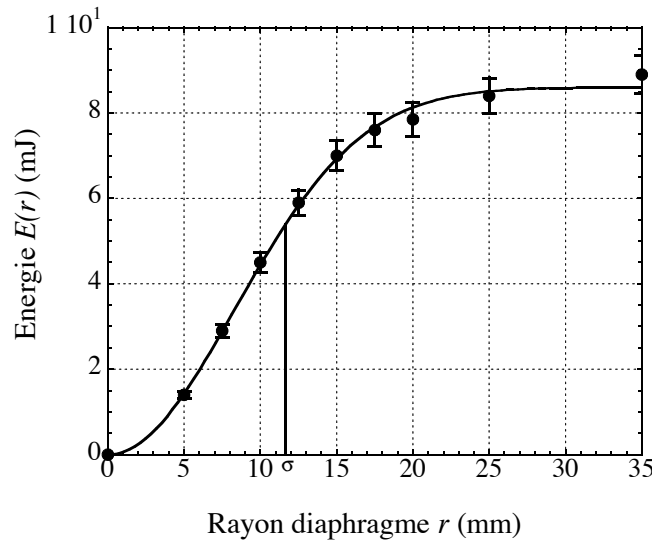
$$w(z) = w_0 \cdot \sqrt{1 + ((z - z_0)/z_R)^2} \quad (2.5)$$

où  $w_0 = \sqrt{2} \cdot \sigma_{0_{1/e}}$  est le *waist* du faisceau au plan focal (défini par  $z = z_0$ ), et  $z_R$  est la

longueur de Rayleigh. Nous obtenons après mesure la valeur suivante pour la longueur de Rayleigh :  $z_R = 190 \pm 20 \text{ } \mu\text{m}$ . Nous pouvons noter que cette valeur est cohérente avec la longueur de Rayleigh telle que nous aurions pu la trouver à l'aide de la détermination du rayon de la tache focale et de l'expression théorique pour un faisceau gaussien :  $z_R = \pi w_0^2 / \lambda = 160 \pm 60 \text{ } \mu\text{m}$ .

#### 2.2.2.4 Éclairement sur cible

**Répartition de l'énergie dans le faisceau** Afin de vérifier la distribution en énergie dans le faisceau en champ proche, nous avons mesuré à l'aide d'un calorimètre l'énergie contenue dans le faisceau après traversée de diaphragmes de rayons variables. La répartition de l'énergie dans le faisceau ainsi obtenue est présentée en figure 2.12. Les points expérimentaux sont ajustés par l'expression correspondant à un faisceau spatialement gaussien :  $E(r) = E \times (1 - e^{-(r/\sigma)^2})$  où  $E$  est l'énergie totale dans le faisceau et  $\sigma$  son rayon en  $1/e$  de l'intensité en champ proche. En travaillant par la suite avec un diaphragme en entrée de 25 mm de diamètre, l'énergie contenue par impulsion avant l'entrée dans le compresseur était de  $8,1 \pm 0,2 \text{ mJ}$ . On mesure aussi un rayon  $\sigma$  de  $11,8 \pm 0,2 \text{ mm}$ .



**Fig. 2.12:** Répartition spatiale de l'énergie dans le faisceau en champ proche. Les mesures sont représentées sous forme de ronds, et la courbe d'ajustement par un trait plein.

**Énergie sur cible** Afin de déterminer l'éclairement sur cible, il faut encore déterminer l'énergie qui a été transportée jusqu'à la chambre expérimentale. En effet, des pertes d'énergie ont lieu au niveau du compresseur, ou plus faiblement, lors de la transmission à travers les hublots (séparant les différentes enceintes expérimentales). La transmission

totale est de  $44 \pm 5 \%$  entre l'énergie avant le compresseur et l'énergie sur cible, soit une énergie de  $3,6 \pm 0,4$  mJ sur cible.

**Calcul de l'éclairement** Pour une distribution gaussienne de l'énergie temporellement et spatialement, l'expression de l'intensité laser au plan focal peut se mettre sous la forme :

$$I(r, t) = I_0 e^{-(t/\tau_{1/e})^2} e^{-(r/\sigma_{0_{1/e}})^2} \quad (2.6)$$

où  $\tau_{1/e}$  et  $\sigma_{0_{1/e}}$  sont les durée et rayon de l'impulsion en  $1/e$  de l'intensité.

L'expression de l'intensité crête  $I_0$  (en  $\text{W.cm}^{-2}$ ) peut se mettre sous la forme :

$$I_0 = \frac{E}{(\sqrt{\pi} \times \tau_{1/e}) \times (\pi \times \sigma_{0_{1/e}}^2)} \times \kappa \quad (2.7)$$

avec  $E$  l'énergie (en J) contenue dans l'impulsion,  $\tau_{1/e}$  la demie largeur temporelle en  $1/e$  (en s),  $\sigma_{0_{1/e}}$  la demie largeur spatiale (en cm) et  $\kappa$  la fraction de l'énergie totale contenue dans la gaussienne définie par les deux paramètres  $\tau$  et  $\sigma$ . En effet, l'énergie n'est pas focalisée entièrement dans la tache centrale (voir image en figure 2.11 pour s'en convaincre) : il y a des "halos" par rapport à un cas idéal décrit par une gaussienne. A partir de ces images, on mesure une concentration  $\kappa$  dans la tache focale de  $75 \pm 5 \%$ .

Avec une pleine largeur à mi-hauteur (Cf. 2.2.2.1) de  $40 \pm 4$  fs, une tache focale en  $1/e$  de  $4,5 \pm 0,8$   $\mu\text{m}$ , et une énergie sur cible de  $3,6 \pm 0,4$  mJ (soit  $2,7 \pm 0,5$  mJ dans le profil gaussien) nous obtenons une intensité maximale de  $(1,0 \pm 0,4) \cdot 10^{17}$   $\text{W/cm}^2$ .

### 2.2.3 Bilan des caractéristiques du laser

Les principales caractéristiques du laser sont résumées dans le tableau 2.1.

Milieu amplificateur	$Ti : Sa$
Cadence de répétition	1 kHz
Longueur d'onde centrale	$812 \pm 5$ nm
Largeur spectrale FWHM	$27 \pm 4$ nm
Durée des impulsions FWHM	$40 \pm 4$ fs
Longueur de Rayleigh	$190 \pm 20$ $\mu$ m
Énergie avant compression	$8,1 \pm 0,2$ mJ
Énergie sur cible	$3,6 \pm 0,4$ mJ
Énergie sur cible (dans gaussienne)	$2,7 \pm 0,5$ mJ
Contraste piédestal ASE (ns)	$1 : 3 \cdot 10^6$
Contraste pré-impulsion ( $C_{9ns}$ )	$1 : 3 \cdot 10^4$
Contraste pré-impulsion ( $C_{4ns}$ )	$1 : 2 \cdot 10^4$
Rayon au plan focal (en $I/e$ )	$4,5 \pm 0,8$ $\mu$ m
Éclairement	$1,0 \pm 0,4 \cdot 10^{17}$ W/cm <sup>2</sup>

**Tab. 2.1:** *Principales caractéristiques du laser.*

## 2.3 Le jet d'agrégats

Nous présentons dans cette section, après avoir défini les agrégats, les paramètres pertinents relatifs à la production des agrégats dans un premier temps. Dans un second temps, nous présentons la caractérisation des agrégats. La constitution des agrégats a été modélisée finement par un modèle à deux dimensions, élaboré en collaboration avec une équipe de l'institut de modélisation de Moscou [Boldarev *et al.* 01] [Dorchies *et al.* 03]. La modélisation a été validée par deux expériences dont nous rendons compte ici : interférométrie Mach-Zehnder et diffusion Rayleigh.

### 2.3.1 Introduction

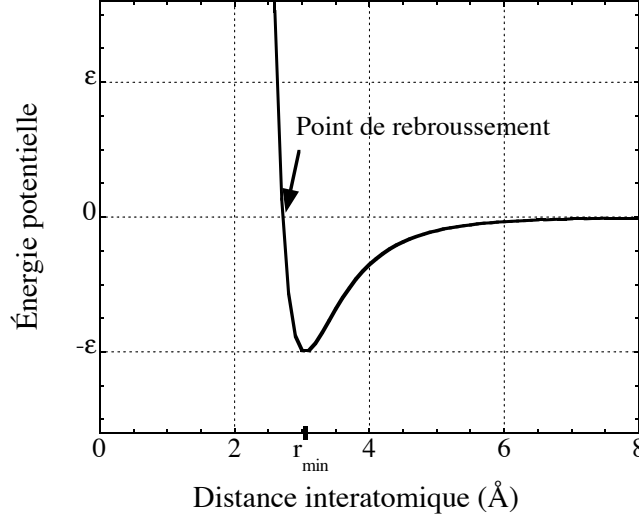
Les agrégats sont constitués de quelques dizaines à plusieurs millions d'atomes, et sont dits métalliques, organiques ou de type Van der Waals selon la liaison liant les atomes entre eux. Nous nous intéressons ici aux agrégats dits de type Van der Waals, dont les forces reliant les différents atomes de gaz rares sont faibles. Il existe différents modèles de potentiels, et nous pouvons retenir l'expression dite de Lennard-Jones suivante :

$$V(r) = -\frac{A}{r^6} + \frac{B}{r^{12}} \quad (2.8)$$

où  $A$  et  $B$  sont des coefficients caractéristiques des atomes constituant l'agrégat.

La figure 2.13 représente l'allure du potentiel de Lennard-Jones :  $\varepsilon$  représente la profondeur du puits, tandis que l'on appelle "point de rebroussement" la position où les composantes attractives et répulsives s'équilibrent. Une unité caractéristique de la distance

telle qu'indiquée sur le schéma est l'angström.



**Fig. 2.13:** Schéma représentant l'allure du potentiel dit de Lennard-Jones.

### 2.3.2 Production d'agrégats de gaz rare

Des agrégats peuvent être formés lors de la détente d'un gaz dans une enceinte sous vide : il y a refroidissement du gaz lors de la détente, et condensation des atomes sous forme d'agrégats. La détente est réalisée au moyen d'une buse : du gaz sous pression est connecté à une tuyère, et le débit est contrôlé par une valve commandée électriquement.

Une des premières études systématiques a été réalisée par Hagena en 1972 [Hagena *et al.* 72]. Un paramètre pertinent (le paramètre de Hagena, noté  $\Gamma^*$ ) a été dégagé de ces études. Il est lié aux conditions expérimentales selon :

$$\Gamma^* = k \frac{(d/\tan\alpha)^{0,85}}{T_0^{2,29}} P_o \quad (2.9)$$

avec :

- $k$  une constante relative au gaz considéré (valant 1650 pour l'argon [Arno *et al.* 95]),
- $P_o$  la pression en amont de la buse (en mbar),
- $T_0$  la température avant la détente (en K),
- $d$  le diamètre de la buse (en  $\mu\text{m}$ ),
- et  $\alpha$  le demi-angle d'ouverture de la buse.

Dans notre cas, nous avons  $d = 800 \mu\text{m}$ ,  $\alpha = 5^\circ$ ,  $P_o$  allant de 20 à 60 bars et  $T_0$  la température ambiante. Le paramètre  $\Gamma^*$  a ainsi une amplitude allant de  $1,7 \cdot 10^5$  à  $5,2 \cdot 10^5$ .

Il a été montré que les atomes s'agrègent lorsque le paramètre  $\Gamma^*$  est supérieur à  $10^3$ , et que les agrégats massifs ( $\geq 10^4$  atomes par agrégat) sont majoritaires lorsque  $\Gamma^*$  est supérieur à  $5 \cdot 10^4$ .

Le nombre d'atomes par agrégat  $N$ , pour des agrégats de taille modeste ( $N \leq 10^4$ ), peut être obtenu par la relation suivante [Hagena 92] :

$$N = 33 \left( \frac{\Gamma^*}{1000} \right)^{2,35} \quad (2.10)$$

Pour  $\Gamma^*$  plus grand que  $10^4$ , la loi empirique donnant le nombre d'atomes par agrégat est toujours du même type, mais avec une loi de puissance différente [Dorchies *et al.* 03] (Cf. section 2.3.3.3) :

$$N = 100 \left( \frac{\Gamma^*}{1000} \right)^{1,8} \quad (2.11)$$

Ces deux lois se recouvrent pour  $\Gamma^*$  voisin de  $10^4$ .

Dans cette partie sont présentées les méthodes employées pour caractériser les agrégats, ainsi que les principaux résultats. La caractérisation ayant été réalisée avant le début du travail présenté ici, il ne sera fait qu'un exposé rapide et tout complément peut-être trouvé dans les références [Boldarev *et al.* 01] [Dorchies *et al.* 03] [Caillaud 04].

En sortie de buse, on peut choisir de positionner ou non un écorceur ("*skimmer*"). Cet instrument permet de ne sélectionner qu'une partie du jet après sa détente, et d'augmenter le taux de condensation effectif dans le lieu de l'interaction (fraction d'atomes en phase "agrégat"). Ceci permet en outre de maintenir plus aisément le vide secondaire dans l'enceinte expérimentale. Nous avons fait le choix de ne pas positionner d'écrèmeur, ce qui, malgré un taux de condensation plus faible, nous permet d'avoir une densité d'agrégats plus importante et d'espérer ainsi une production de rayonnement X plus intense. Le laser a été focalisé 2 mm sous la buse.

### 2.3.3 Caractérisation

Nous présentons ici tout d'abord les grandeurs utiles à la description du modèle rendant compte de la production des agrégats. Les expériences nous permettant de valider le code seront alors présentées, avant de présenter le modèle lui-même et les informations qu'il peut nous fournir.

Il a été montré que les agrégats ont une structure cubique à face centrée [Farges *et al.* 81], dont le paramètre de maille vaut  $5,34 \pm 0,01$  Å (pour  $N > 1000$ ). Aussi, le rayon  $r$  (en



À) d'un agrégat peut s'exprimer selon le nombre  $n(r)$  d'atomes dans l'agrégat :

$$r \approx \sqrt[3]{9n} \quad \Longleftrightarrow \quad n(r) = \frac{r^3}{9} \quad (2.12)$$

Sous l'hypothèse d'un équilibre entre les deux phases constituant le jet (gaz et agrégats), nous pouvons exprimer  $N_{agr}$  la densité moyenne d'agrégats,  $R$  le rayon moyen des agrégats et  $N$  le nombre moyen d'atomes par agrégat à l'aide de  $f(r, \mathbf{x})$  la fonction de distribution des agrégats en taille, selon la position  $\mathbf{x}$  :

$$\begin{aligned} N_{agr}(\mathbf{x}) &= \int_0^\infty f(r, \mathbf{x}) \, dr , \\ R(\mathbf{x}) &= \frac{\int_0^\infty r f(r, \mathbf{x}) \, dr}{\int_0^\infty f(r, \mathbf{x}) \, dr} , \\ N(\mathbf{x}) &= \frac{\int_0^\infty n(r) f(r, \mathbf{x}) \, dr}{\int_0^\infty f(r, \mathbf{x}) \, dr} . \end{aligned} \quad (2.13)$$

Avec  $\eta$  le taux de condensation (la fraction d'atomes en phase agrégat), nous avons la relation :

$$N N_{agr} = \eta N_{tot} \quad (2.14)$$

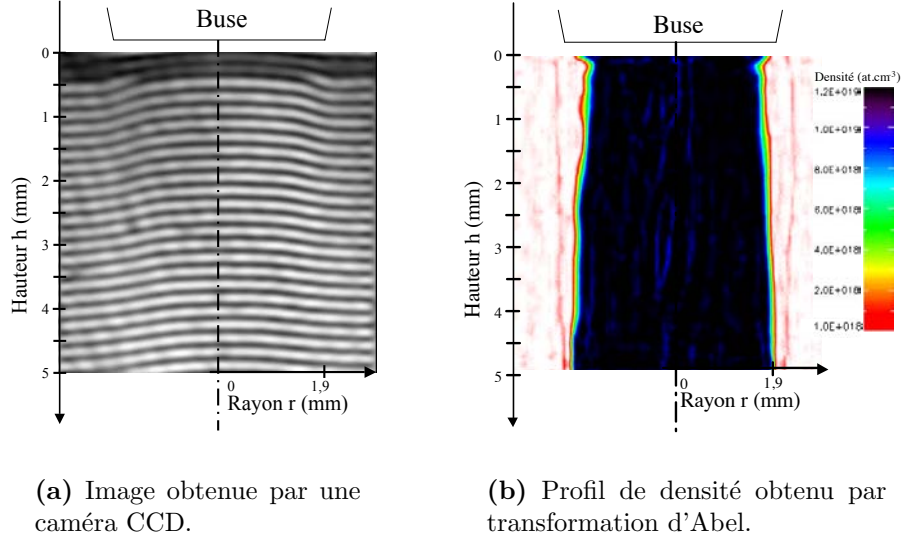
où  $N_{tot}$  est la densité moyenne des atomes toutes phases confondues.

Les trois paramètres locaux  $\eta$ ,  $N$  et  $N_{tot}$  caractérisent complètement le jet, en gardant à l'esprit qu'il s'agit de valeurs moyennées obtenues à partir de la distribution des agrégats en taille (la connaissance de ces paramètres ne nous permet pas de connaître la distribution elle-même). Nous allons présenter dans les sections suivantes les étapes nous permettant d'obtenir la densité  $N_{tot}$  avec la méthode d'interférométrie Mach-Zehnder, le produit du taux de condensation  $\eta$  par le nombre  $N$  d'atomes par agrégat avec la diffusion Rayleigh, et enfin de séparer le taux de condensation d'avec le nombre d'atomes par agrégat par l'apport de la modélisation. Un bilan synthétise les caractéristiques utiles des agrégats en fin de section.

### 2.3.3.1 Interférométrie Mach-Zehnder

L'interférométrie Mach-Zehnder est obtenue en divisant en deux bras un faisceau issu d'un laser He-Ne. L'un des deux bras sert de référence (sa propagation est réalisée sous vide), tandis que le faisceau correspondant à l'autre bras se propage à travers le jet. On recombine alors les deux bras qui interfèrent, et on image le plan du jet sur une caméra CCD. Les résultats ont été obtenus sur la station de caractérisation "jet de gaz" du laboratoire LULI, auprès de l'École Polytechnique à Palaiseau [Malka *et al.* 00].

On peut voir sur la figure 2.14(a) une image obtenue par le montage ainsi décrit. L'écart en phase obtenu par cette technique (déplacement des franges) intègre l'indice de réfraction  $\eta_{opt}$  à travers le jet de gaz le long de l'axe de propagation du faisceau He-Ne.



**Fig. 2.14:** *Interférométrie Mach-Zehnder.*

Pour la longueur d'onde du faisceau laser,  $\lambda_{He-Ne}$ , loin d'une résonance du milieu dans lequel se propage le deuxième bras,  $\eta_{opt}$  est le résultat macroscopique des contributions de tous les atomes d'argon, tant en phase gazeuse qu'agrégés. La relation liant l'indice de réfraction à la densité atomique totale est :

$$\eta_{opt}^2 - 1 = \beta N_{tot} \quad (2.15)$$

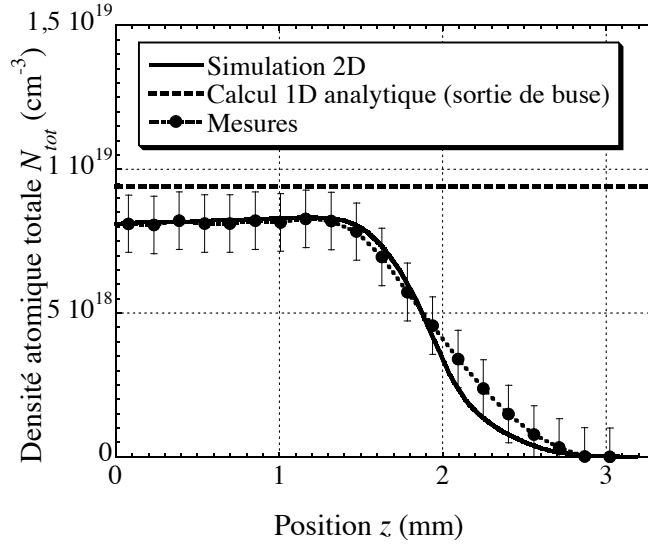
avec  $\beta = 2,10 \cdot 10^{-23} \text{ cm}^3$  la constante de Gladstone-Dale pour l'argon [Drake 96].

Nous obtenons alors la densité totale  $N_{tot}$  en deux étapes. Tout d'abord, l'indice de réfraction  $\eta_{opt}$  est obtenu en réalisant une transformation d'Abel [Bockatsen 61] depuis le déplacement des franges. Ensuite, la densité totale  $N_{tot}$  est obtenue à l'aide de l'équation 2.15. Le détail de cette analyse est présenté en référence [Caillaud 04].

Le résultat est indiqué en figure 2.14(b). La résolution spatiale de  $N_{tot}$  atteint 15  $\mu\text{m}$  selon les trois dimensions de l'espace, sous couvert de l'hypothèse de symétrie de révolution autour de l'axe de la buse. La résolution temporelle est limitée à 2 ms par le temps d'ouverture de l'obturateur placé devant le laser He-Ne.

Une coupe du profil de densité (Cf. Fig. 2.14(b)) réalisée à 1,5 mm sous la buse est indiquée en figure 2.15, pour une pression en amont de 40 bars. Les mesures sont indiquées en cercles pleins. La densité atteinte au centre de l'axe de révolution atteint jusqu'à près de  $10^{19}$  atomes par  $\text{cm}^3$ , et est homogène sur toute la zone centrale du jet, avec un front de montée s'étendant sur  $\sim 1 \text{ mm}$ . Le résultat d'un calcul 1D analytique simple est indiqué

en tirets : ce calcul rapide donne un relativement bon ordre d'idée sur la densité qui peut être atteinte. Les résultats de la simulation 2D (Cf. section 2.3.3.3) sont présentés (en trait plein) : l'accord est très bon avec l'expérience.



**Fig. 2.15:** Profil de densité atomique totale, à 1,5 mm sous la buse, pour une pression en amont de 40 bars.

### 2.3.3.2 Diffusion Rayleigh

La diffusion Rayleigh est obtenue à l'aide d'un faisceau laser, faisceau He-Ne polarisé linéairement, focalisé sur le jet. Une lentille est placée perpendiculairement à la fois à l'axe de propagation du faisceau, et l'axe constitué par le jet de gaz. Cette lentille permet d'imager le long de l'axe laser la lumière diffusée sur une caméra CCD.

Le laser incident excite chaque atome, qu'il soit en phase gazeuse ou solide. Chacun de ces atomes se comporte alors comme un dipôle qui émet un rayonnement à la même longueur d'onde que la longueur d'onde incidente (voir par exemple [Born *et al.* 96]). La phase du champ diffusé quant à elle est directement contrôlée par la phase du champ électrique de l'impulsion laser. L'intensité de la diffusion peut s'exprimer selon :

$$I_{at} = C\alpha_{at}^2 I_0 \quad (2.16)$$

avec C un facteur incluant l'angle de collection, la transmission du système d'acquisition et l'efficacité quantique de détection de la caméra CCD, et  $\alpha_{at}$  la polarisabilité d'un atome.

Pour  $N$  atomes en phase gazeuse, la contribution à l'intensité de la diffusion s'exprime simplement :

$$I_N(\text{gaz}) = NC\alpha_{at}^2 I_0 \quad (2.17)$$

puisque les atomes sont distribués de manière aléatoire. En revanche, pour un rayon  $r$  d'agrégat plus petit que la longueur d'onde  $\lambda$  de l'onde laser, on peut considérer que tous les atomes émettent une onde avec la même phase. L'intensité de la diffusion pour  $N$  atomes agrégés s'exprime selon :

$$I_N(\text{agrégat}) = N^2 C\alpha_{at}^2 I_0 \quad (2.18)$$

L'intensité de diffusion totale peut s'écrire en prenant en compte la phase gazeuse et agrégée selon :

$$I_{total} = (1 - \eta)N_{tot}C\alpha_{at}^2 I_0 + N_{agr}N^2C\alpha_{at}^2 I_0 \quad (2.19)$$

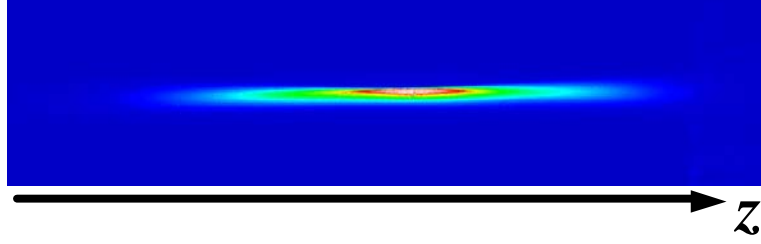
avec  $\eta$  la fraction d'atomes en phase agrégat. On peut normaliser par la valeur  $I_{gaz}$ , mesurée dans la même enceinte avec un gaz statique de même densité atomique moyenne  $N_{tot}$  :

$$\frac{I_{total}}{I_{gaz}} = (1 - \eta) + \eta N \approx \eta N \quad (2.20)$$

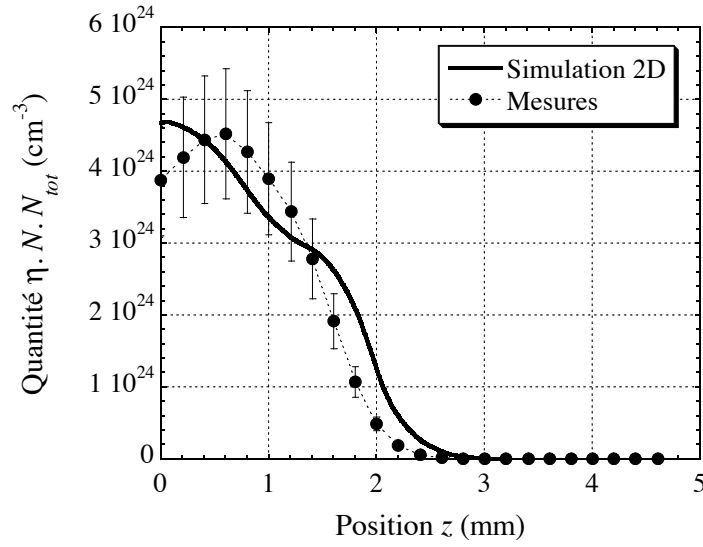
On obtient ainsi le produit du taux de condensation par le nombre moyen d'atomes par agrégat.

Le principe de la diffusion Rayleigh a déjà été appliqué à des agrégats auparavant [Bell *et al.* 93] [Bush *et al.* 98]. En figure 2.16 est indiqué un résultat de mesure effectuée par le procédé décrit. La résolution spatiale est de 100  $\mu\text{m}$ , limitée par la taille du faisceau dans la zone d'émission. En figure 2.17 est présenté un profil obtenu par diffusion Rayleigh. Nous pouvons ici encore noter un bon accord entre le modèle et les valeurs expérimentales (Cf. section 2.3.3.3). La résolution spatiale que nous avons dans les trois dimensions nous permet de justifier l'hypothèse de symétrie de révolution indiquée lors de l'expérience d'interférométrie.

L'information obtenue par ce diagnostic ne nous fournit que le produit du taux de condensation  $\eta$  par le nombre  $N$  d'atomes par agrégats. Afin de séparer les deux grandeurs  $\eta$  et  $N$ , nous nous appuyons sur le modèle 2D qui est présenté en section suivante.



**Fig. 2.16:** Image de la lumière diffusée obtenue par diffusion Rayleigh.



**Fig. 2.17:** Profil de diffusion Rayleigh, à 1,5 mm sous la buse, pour une pression en amont de 40 bars. Les mesures sont représentées sous forme de ronds, et la quantité équivalente issue du modèle (produit du taux de condensation par la densité totale et par le nombre d'atomes par agrégat) en trait plein.

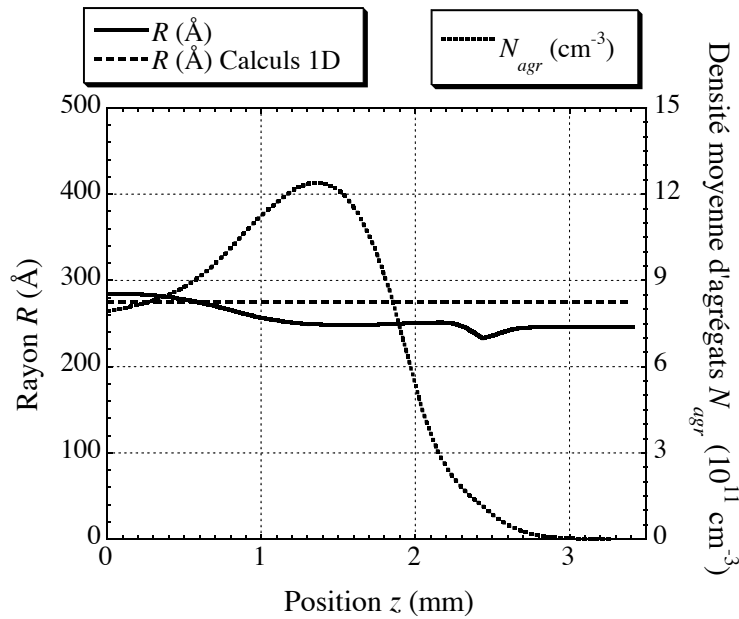
### 2.3.3.3 Modélisation

Des deux sections précédentes, on a vu que l'interférométrie Mach-Zehnder permet d'obtenir la densité atomique totale  $N_{tot}$ , tandis que la diffusion Rayleigh nous fournit le produit du taux de condensation  $\eta$  par le nombre  $N$  d'atomes par agrégat. Pour séparer les trois paramètres  $\eta$ ,  $N_{tot}$  et  $N$ , nous pouvons nous appuyer sur la simulation 2D, validée par l'accord avec les deux expériences présentées. L'exposé de la modélisation est présenté dans les références [Boldarev *et al.* 01] [Dorchies *et al.* 03]. Cette modélisation est basée sur la méthode des moments d'une distribution. Développé pour l'application de flux de vapeurs (turbines pour centrales électriques), le modèle est adapté à nos conditions expérimentales. La phase condensée (liquide seulement) est le résultat de fluctuations dans un gaz super-refroidi, par condensation spontanée. La fréquence des fluctuations

est basée sur la théorie des fluctuations hétérophase. Pour les micro-gouttelettes ainsi formées, il existe des tensions de surface, ce qui induit une taille critique en-deçà de laquelle l'évaporation l'emporte. Seules les micro-gouttelettes dont la taille est supérieure à une taille critique s'accroissent. Pour calculer le taux d'accroissement, il est considéré que la température pour la micro-gouttelette est indépendante du rayon, et égale à la température de saturation. Ainsi, les hypothèses considérées sont :

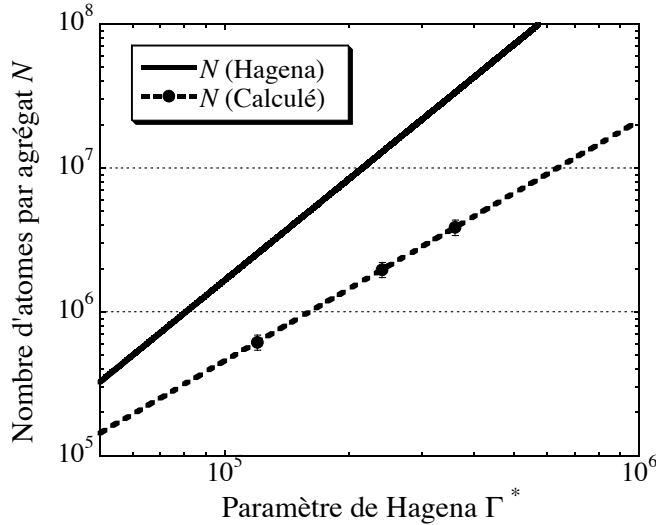
- La vitesse des agrégats est la même que la vitesse du jet de gaz.
- La température des agrégats est indépendante du rayon et égale à la température de saturation.
- Les effets d'agrégats se scindant ou fusionnant, la viscosité, la conduction ainsi que la turbulence sont faibles et négligés.
- Le refroidissement des agrégats et leur agencement sous forme cristalline sont ignorés.

Les profils calculés du rayon  $R$  et de la densité moyenne d'agrégats  $N_{agr}$  en fonction de la position le long de l'axe  $z$  de propagation du laser sont représentés sur la figure 2.18. On peut voir que le rayon moyen des agrégats est constant quelle que soit la position considérée le long de l'axe  $z$ . La densité moyenne d'agrégats  $N_{agr}$  suit peu ou prou le profil de la densité totale (Cf. Fig. 2.15), homogène pour la partie centrale du jet. L'étude a été réalisée pour une pression de 20, 40 et 60 bars. Pour chacune de ces pressions, le calcul indique les mêmes comportements : la taille moyenne des agrégats est uniforme dans le jet, et la densité moyenne d'agrégat  $N_{agr}$  présente un profil similaire à  $N_{tot}$ .



**Fig. 2.18:** Profils numériques de  $R$  et de  $N_{agr}$  en fonction de  $z$ , à 1,5 mm sous la buse pour une pression en amont de 40 bars. Le rayon  $R$  est représenté en trait plein, et l'estimation par un calcul 1D du rayon en sortie de buse en tirets. Le nombre  $N$  d'atomes par agrégats est représenté en pointillés.

On peut noter, comme présenté en figure 2.19, que les différents résultats obtenus permettent de prolonger les résultats obtenus par Hagena, et de compléter la loi de comportement proposée pour les agrégats de plus de  $10^4$  atomes par agrégat (Cf. Eq. 2.10).



**Fig. 2.19:** Nombre moyen d'atomes par agrégat en fonction du paramètre de Hagen  $\Gamma^*$ . En trait plein : à partir de la formule d'Hagena (Cf. Eq. 2.10). En points et pointillés : à partir des valeurs obtenues par notre étude (simulation et expérience) (Cf. Eq. 2.11).

### 2.3.4 Bilan des caractéristiques des agrégats

Dans le tableau 2.2 sont présentées de manière synthétique les différentes caractéristiques des agrégats, correspondant à trois pressions différentes en amont de la buse.  $N_{agr}$  (densité d'agrégats),  $R$  et  $N$  (nombre d'atomes par agrégat) sont des grandeurs moyennées sur la distribution des agrégats en taille.  $\delta R/R$  est l'écart-type relatif de la distribution en taille des agrégats, tel que calculé par le modèle.

Il est à noter que ces caractéristiques sont déterminées à 1,5 mm sous la buse. Les expériences ont été menées en focalisant le faisceau laser à 2 mm sous la buse, mais les simulations aussi bien que les mesures ne montrent pas de modification significative du jet entre ces deux hauteurs.

Par ailleurs, le diamètre de la buse étant de 4 mm, beaucoup de gaz remplit l'enceinte à chaque ouverture de buse. Les capacités de pompage étant limitées, nous devons restreindre l'arrivée de gaz. Aussi, la buse est ouverte 20 ou 40 ms toutes les secondes. Le laser fonctionnant au kHz, le taux effectif d'interaction laser-agrégat sera de 20 ou 40 Hz [Dorchies *et al.* 03]. L'établissement du jet se réalisant en moins d'une milliseconde, les 20 ou 40 impulsions laser interagissent avec des agrégats ayant les mêmes caractéristiques.

$P_o$ (bars)	$\eta$ (%)	$R$ (Å)	$\delta R/R$ (%)	$N$	$N_{agr}$ (cm <sup>-3</sup> )
20	20,7	183	14	$6,14 \cdot 10^5$	$1,60 \cdot 10^{12}$
40	23,5	275	12	$1,97 \cdot 10^6$	$1,12 \cdot 10^{12}$
60	25,3	348	11	$3,87 \cdot 10^6$	$9,20 \cdot 10^{11}$

**Tab. 2.2:** *Principales caractéristiques des agrégats.*

## 2.4 Les diagnostics X

### 2.4.1 Introduction

Comme on peut le voir sur la figure 2.1, nous disposons de plusieurs diagnostics pour caractériser l'émission X. Nous avons utilisé le système d'imagerie sténopé, alterné avec un diagnostic fournissant un spectre pour une grande gamme énergétique, un spectromètre de haute résolution intégré en temps ainsi qu'une caméra à balayage de fente. Nous allons présenter ici ces différents instruments, et détailler tout particulièrement la caméra à balayage de fente au chapitre suivant.

### 2.4.2 Imagerie sténopé

Un système d'imagerie sténopé consiste à imager une source lumineuse sur un plan à l'aide d'un trou. L'information que ce diagnostic peut nous donner est spatiale : on peut obtenir la position, ainsi que la taille de la source. Un schéma de principe est proposé en figure 2.20(a). Le grandissement est donné par les distances  $a$  entre la source de rayonnement et le trou et  $b$  entre le trou et le plan de détection. Le grandissement est donnée par :

$$\gamma = -b/a \quad (2.21)$$

La résolution de l'instrument dépend des distances  $a$  et  $b$  ainsi que du diamètre du trou  $\phi_{trou}$  :

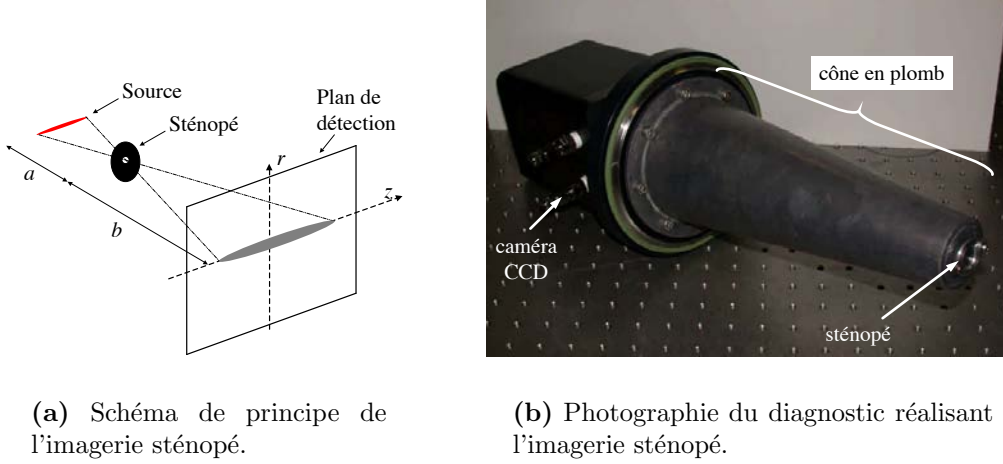
$$\text{Résolution} = \phi_{trou} \times \left(1 + \frac{a}{b}\right) \quad (2.22)$$

Le trou a été réalisé en collaboration avec la Plateforme d'Application des Lasers en Aquitaine (PALA). Il est constitué d'une feuille d'inox de 150  $\mu\text{m}$  d'épaisseur, dont un trou de 23  $\mu\text{m}$  de diamètre a été réalisé en micro-usinage à l'aide d'un laser femto-seconde. Un filtre en mylar (6  $\mu\text{m}$ ) aluminisé par 0,148  $\mu\text{m}$  sur chacune de ses faces permet de ne sélectionner que le rayonnement dont l'énergie est supérieure à, typiquement, 800 eV. Un cône en plomb, long de 270 mm, situé entre le sténopé et le détecteur, permet de



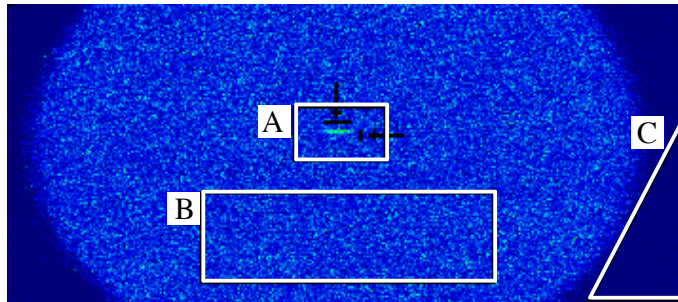
protéger l'ensemble de la caméra CCD de tout rayonnement parasite. Une photographie de l'instrument est présentée en figure 2.20(b). Le sténopé ainsi que les filtres sont fixés à l'avant du cône de plomb. La caméra CCD est protégée à l'arrière du cône.

Lors de nos expériences, nous avons pour  $a$  et  $b$  les valeurs respectives de  $160 \pm 5$  mm et  $330 \pm 5$  mm, et  $\phi_{trou} = 23 \pm 3$   $\mu\text{m}$ . Aussi, le grandissement était de  $2,1 \pm 0,1$  et la résolution était de  $34 \pm 5$   $\mu\text{m}$ .



**Fig. 2.20:** *Imagerie sténopé.*

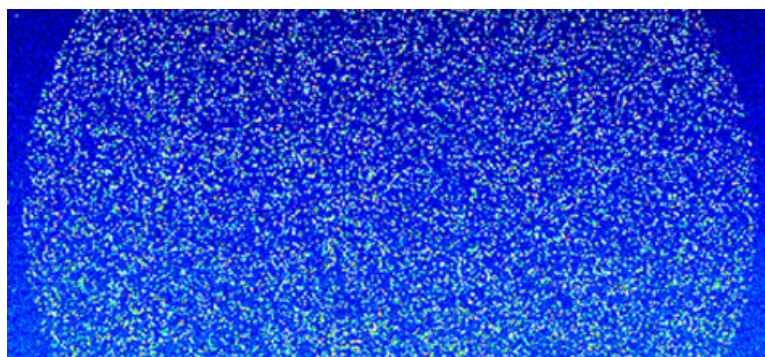
Une image obtenue à l'aide de ce diagnostic est présentée en figure 2.21. Nous pouvons observer différentes zones, identifiables comme suit : au centre du cadre A est l'image spatiale proprement dite, obtenue à l'aide du système sténopé ; tout autour, en forme circulaire, se trouve le signal qui n'est pas passé par le trou, mais qui est passé à travers son support -la feuille d'incox- ; et enfin sur les bords, au-delà de la forme circulaire, une zone protégée par le cône en plomb. Etant donné l'épaisseur de ce plomb, on attribue le signal détecté dans cette zone comme étant issu de la feuille d'incox par fluorescence.



**Fig. 2.21:** *Image obtenue par imagerie sténopé. En A : image spatiale du plasma obtenue à travers le sténopé. En B : rayonnement détecté à travers le support (en incox) du sténopé. En C : zone protégée par le cône de plomb.*

### 2.4.3 Spectroscopie large bande : "MatriX"

L'équipe s'est intéressée au développement d'un spectromètre X matriciel (MatriX), dans une gamme étendue allant de 2 à 10 keV. Le montage expérimental reprend celui présenté à la section précédente (Cf. 2.4.2) concernant l'imagerie sténopé. Il s'agit d'observer directement le rayonnement issu du plasma par une caméra CCD, au travers d'un filtre passe-haut et en protégeant l'ensemble du système de détection par un cône en plomb. Il n'y a pas de trou en entrée : il n'y a donc pas ici d'information spatiale. Nous obtenons de manière éparse sur l'ensemble du chip de détection des signaux s'étalant sur quelques pixels, avec des intensités variables. Par ailleurs, les temps d'exposition sont très brefs, de l'ordre de quelques tirs laser. En effet, un temps trop long peut induire des erreurs d'analyse imputables à de "l'empilement" : deux photons de 3 keV donnent sensiblement le même nombre de coups CCD qu'un photon unique de 6 keV. La figure 2.22 présente une image obtenue à l'aide d'une caméra CCD.

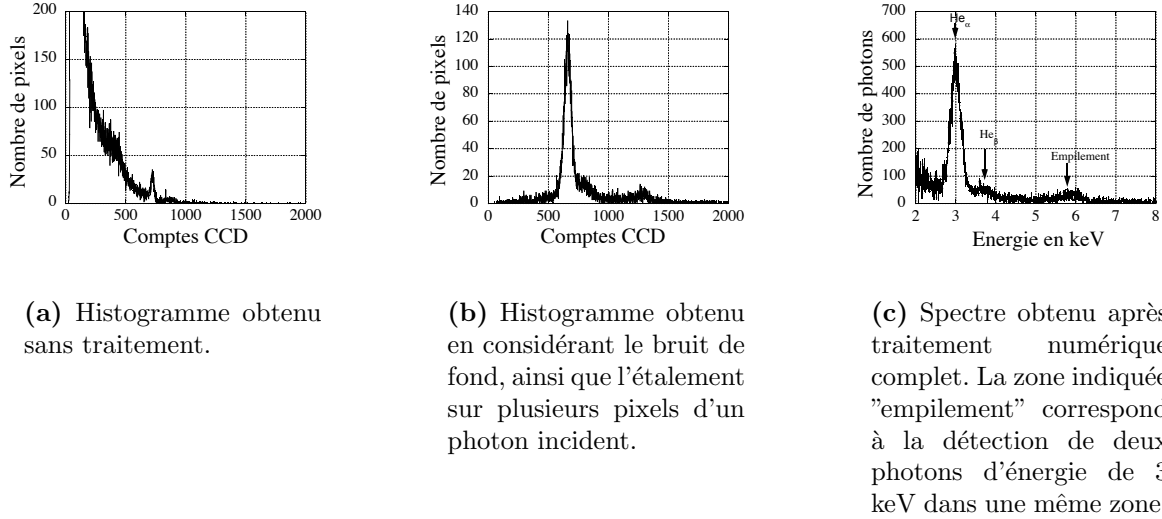


**Fig. 2.22:** Image obtenue sur la caméra CCD éclairée par la source X.

Pour obtenir un spectre, il faut tout d'abord effectuer un histogramme de l'image obtenue : la valeur des comptes obtenus sur la caméra CCD est en effet proportionnelle à l'énergie du photon qui a interagit. Il faut soustraire le bruit de fond avec attention lors de cette opération. En effet, un bruit systématique sur une image brute résulte en un décalage dans un histogramme selon l'axe des abscisses, l'échelle des énergies. D'autre part, un photon étant transformé en électron, il peut y avoir diffusion en entrée de la caméra CCD du signal, et le signal peut être détecté sur plusieurs pixels voisins. La somme des comptes sur l'ensemble de ces pixels peut ne pas correspondre linéairement à l'énergie incidente du photon. Pour cette raison, on ne garde que les signaux entièrement enregistrés dans un seul pixel. Un exemple d'histogramme est indiqué sur la figure 2.23(a), tel qu'il peut être obtenu sans traitement particulier des données. L'histogramme présenté en figure 2.23(b) présente le résultat obtenu après soustraction du bruit de fond et en écartant les signaux répartis sur plusieurs pixels voisins.

L'étape suivante consiste à étalonner l'histogramme obtenu pour avoir un spectre. Des corrections sont à apporter sur le nombre de coups fourni par la caméra CCD en fonction de l'énergie du photon incident. Alors seulement on peut tenir compte des courbes de transmission des différents filtres et de l'efficacité quantique de détection de la caméra CCD.

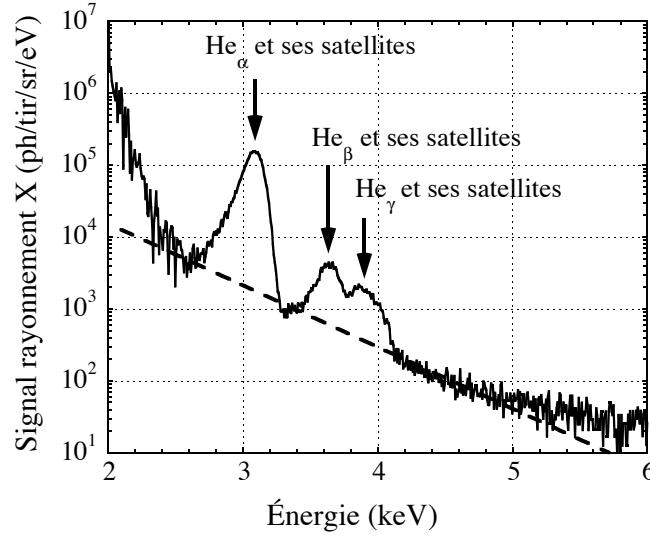
La figure 2.23(c) présente un spectre obtenu par le spectromètre large bande après le traitement numérique complet. Nous voyons autour de 6 keV un artefact émerger du bruit de fond : ceci ne correspond pas à du signal, mais à l'accumulation de deux photons de 3 keV.



**Fig. 2.23:** *Résultat du diagnostic MatrixX.*

De façon à éviter ce phénomène d'empilement tout en gardant une bonne statistique, il est nécessaire de sommer un grand nombre ( $\sim 100$ ) d'histogrammes, chacun obtenu sur un temps d'exposition court ( $\sim 100$  tirs laser). Nous présentons en figure 2.24 un spectre ainsi obtenu : spectre large bande de 2 à 6 keV, avec une résolution spectrale meilleure que 150 eV. On peut remarquer à 3,1 keV le signal correspondant à la raie He <sub>$\alpha$</sub>  et ses satellites, ainsi que les raies He <sub>$\beta$</sub>  et He <sub>$\gamma$</sub>  et leurs satellites à 3,5 et 3,8 keV respectivement. La courbe en tiret est indiquée pour rappeler que les pics observés se superposent à un signal exponentiel décroissant qu'on peut décrire par une température moyenne. Ce diagnostic nous permet de résoudre une grande gamme spectrale, mais ne nous permet pas de différencier les différentes raies provenant de degrés d'ionisation différents, satellites de la raie He <sub>$\alpha$</sub>  par exemple. L'étude plus fine des raies nous intéressant ici, il était nécessaire d'utiliser conjointement un spectromètre ayant une haute résolution. Cet instrument est détaillé dans la section suivante.

Les différentes considérations avancées ici ont été évaluées tout particulièrement par Claude Fourment, de l'équipe SXPI du CELIA. On peut consulter également avec profit la référence [Bastiani 98, p112-122].



**Fig. 2.24:** Spectre obtenu par le spectromètre X "Matrix" dans la gamme énergétique de 2 à 6 keV. La composante basse énergie du spectre (inférieure à 2,5 keV) doit être considérée avec précaution, le signal obtenu après analyse étant très sensible à la transmission des filtres qui varie très rapidement dans cette zone. Ceci correspond aux conditions expérimentales suivantes : pression en amont de 20 bars, une énergie de 3,8 mJ sur cible, avec des durées d'impulsion de  $200 \pm 50$  fs (150 acquisitions de 100 tirs laser chacune).

#### 2.4.4 Spectroscopie de haute résolution

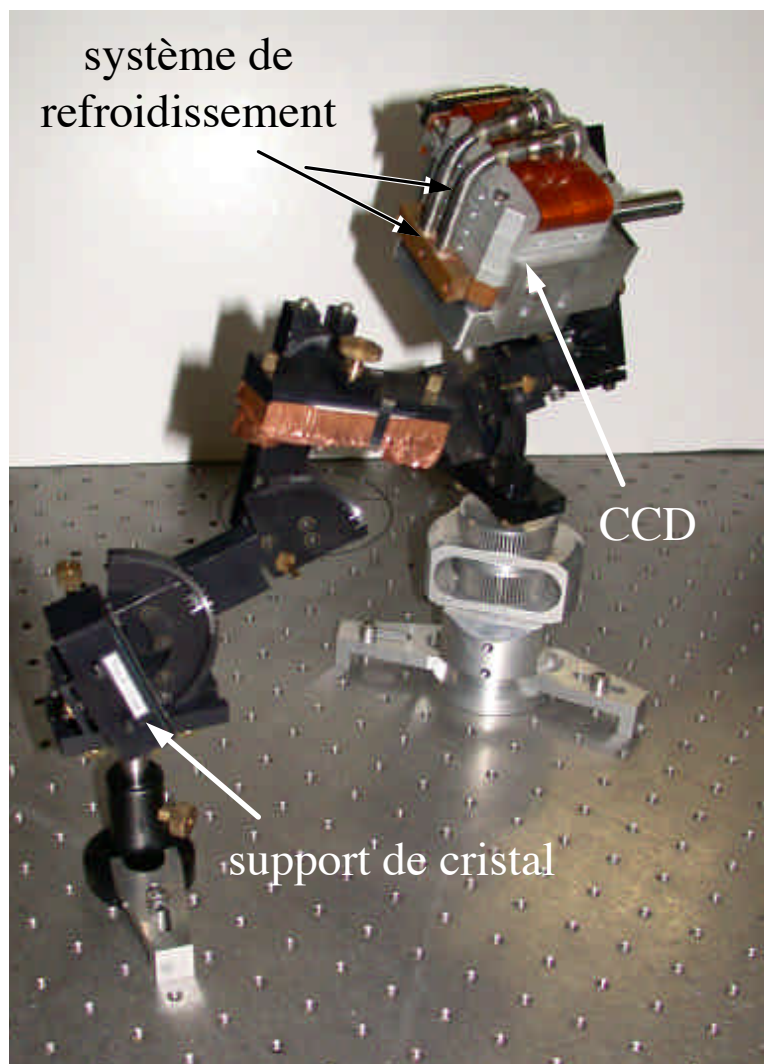
Pour l'étude de l'émission X produite par le plasma dans la gamme autour des raies de transitions de couche K, nous avons utilisé un spectromètre de haute résolution. Un cristal permet de disperser spectralement le rayonnement issu d'une source selon la loi de Bragg. Cette loi peut s'exprimer sous la forme :

$$2 d \sin \theta_B = n \lambda_n \quad (2.23)$$

avec  $n$  l'ordre de diffraction,  $d$  la distance interplanaire du cristal, et  $\lambda_n$  la longueur d'onde du signal réfléchi à l'angle de Bragg  $\theta_B$  et à l'ordre de diffraction  $n$ . L'efficacité de la réflexion est fonction de la composition du cristal.

Ce spectromètre a été développé avec le laboratoire VNIIFTRI (Centre de données spectroscopiques d'ions multichargés), situé en Russie. Les principes de l'élaboration et de la caractérisation ont été exposés dans un article (Cf. réf [Blasco *et al.* 01]). Une photographie du spectromètre est présentée en figure 2.25. Il est constitué principalement d'un cristal et d'une caméra CCD. Placé sous vide, le chip de la caméra CCD ne peut pas

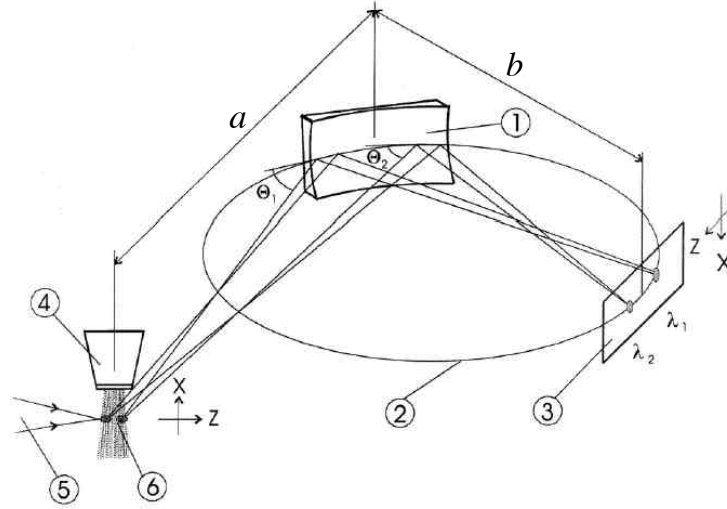
évacuer sa chaleur : un système de refroidissement approprié a été ajouté et est indiqué également.



**Fig. 2.25:** Photographie du spectromètre de haute résolution.

Le schéma de principe est représenté sur la figure 2.26. Le faisceau laser est focalisé sur le jet d'agrégats issu de la buse. L'interaction produit un plasma, dont le rayonnement est émis selon toutes les directions ( $4\pi$  stéradians). La loi de Bragg est indiquée ici selon le plan méridional (horizontal) : la réflexion a lieu pour deux longueurs d'onde selon deux angles différents,  $\theta_1$  et  $\theta_2$ .

Le cristal est en mica (de dimension  $30 \times 10 \text{ mm}^2$ ), à courbure sphérique (rayon de courbure  $R = 100 \text{ mm}$ ). La résolution spatiale obtenue est de  $40\text{-}80 \text{ }\mu\text{m}$ , et le grandissement  $\gamma = b/a$  (Cf. Fig. 2.26),  $a$  étant la distance entre la source et le cristal et  $b$  la distance entre le cristal et le plan de détection. La résolution spectrale quant à elle est estimée à  $\lambda/\delta\lambda \sim 3000$  (soit  $\sim 1 \text{ eV}$  en moyenne sur l'ensemble de la gamme spectrale allant de 2,9 à 3,3 keV). Elle est limitée par la nature du cristal, la géométrie du montage et par la taille non nulle de la source.



**Fig. 2.26:** Schéma de principe du spectromètre intégré en temps. 1 : Cristal. 2 : Cercle de Rowland. 3 : Plan de l'imagerie de la caméra CCD. 4 : Buse. 5 : Faisceau laser. 6 : Plasma.

Pour calibrer l'instrument en absolu, nous devons considérer l'efficacité du spectromètre  $\varepsilon(E, \theta)$  définie par :

$$\text{Nombre de comptes CCD} = \int \int \varepsilon(E, \theta) N(E, \theta) dE d\theta \quad (2.24)$$

où  $N(E, \theta) dE d\theta$  est le nombre de photons émis par stéradian, entre  $E$  et  $E + dE$  et  $\theta$  et  $\theta + d\theta$  par la source X.

Elle peut s'écrire :

$$\varepsilon(E, \theta) = \Omega \times R_{\text{cristal}}(\theta) \times T_{\text{filtre}}(E) \times EQD(E) \times \eta_{\text{conversion}}(E) \quad (2.25)$$

avec :

- $\Omega$  l'angle solide de collection (en sr),
- $R_{\text{cristal}}(\theta)$  la réflectivité du cristal,
- $T_{\text{filtre}}$  la transmission du filtre,
- $EQD$  l'efficacité quantique de détection ("Quantum detection efficiency"),
- et  $\eta_{\text{conversion}}$  le rendement de conversion de la caméra (nombre de comptes CCD par photon d'énergie  $E$  incident sur la caméra CCD).

L'angle solide de collection est défini selon :  $\Omega = \frac{l \times L \times \cos \theta}{D^2}$  avec  $l$  et  $L$  la largeur et la longueur du cristal,  $D$  la distance entre la source et le cristal,  $\theta$  l'angle entre le rayonnement issu du plasma et la perpendiculaire au plan du cristal. Pour une énergie donnée, cet angle solide de collection est aussi limité par l'efficacité de la réflexion  $R(\theta)$  sur le cristal. Cette dernière est caractérisée en fonction de l'angle  $\theta$  par une courbe appelée "rocking curve".

(profil de réflexion).

Pour une énergie donnée, l'efficacité  $\varepsilon(E)$  devient donc :

$$\begin{aligned}\varepsilon(E) &= \int_{\theta} \varepsilon(E, \theta) d\theta \\ &= \int \Omega R_{cristal}(\theta) d\theta \times T_{filtre}(E) \times EQD(E) \times \eta_{conversion}(E) \\ &= \frac{l}{D} \times R_{int} \times T_{filtre}(E) \times EQD(E) \times \eta_{conversion}(E)\end{aligned}\quad (2.26)$$

où  $R_{int}$  correspond à la réflectivité intégrée du cristal selon le plan méridional (horizontal) (angle  $\theta$ ).

Une estimation de la réflectivité peut-être obtenue à partir des travaux de Hölzer [Hölzer *et al.* 98]. En travaillant usuellement à l'ordre 4 de diffraction, on peut estimer à 30  $\mu$ rad la valeur de la réflectivité intégrée, en supposant que la valeur pour un cristal plan soit voisine de la valeur pour un cristal sphérique (Cf. Fig. 2.27(a)).

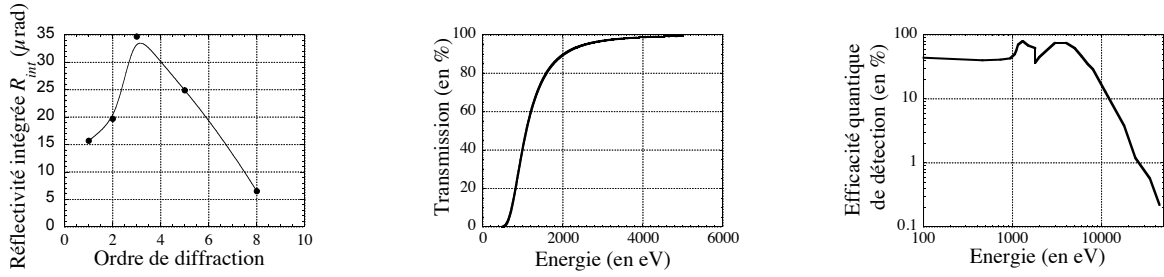
Le filtre est en béryllium, et les propriétés de transmission en fonction de l'énergie du photon incident peuvent être obtenues à partir de tables<sup>1</sup>. Un filtre de 8  $\mu$ m était employé, et sa transmission est représentée sur la figure 2.27(b). Il s'agit d'un filtre passe-haut : les photons dont l'énergie est supérieure à 2 keV ont une probabilité de transmission supérieure à 90 %. On peut considérer sur cette courbe que la limite basse pour la gamme énergétique de l'instrument est à environ 1,0-1,5 keV.

EQD est l'efficacité quantique de détection de la caméra CCD servant à détecter le signal dans le spectromètre intégré en temps. On peut voir sur la figure 2.27(c) que l'efficacité est voisine de 75 % pour la gamme en énergie proche de 3 keV. On peut déduire de cette courbe que la limite haute pour la gamme énergétique de l'instrument est à environ 10 keV.

$\eta_{conversion}$  est le rendement de conversion de la caméra. Il correspond au nombre de coups CCD créés par un photon. Plus le photon incident a une énergie élevée, plus il créera de paires électron-trou, l'énergie nécessaire à la création d'une paire électron-trou étant de 3,65 eV.  $\eta_{conversion}$  dépend donc de la longueur d'onde observée, ainsi que de la sensibilité instrumentale de détection choisie (typiquement 10 paires électron-trou pour un compte CCD).

Aussi, avec les valeurs obtenues, nous pouvons estimer  $\epsilon(E)$ . Une image brute obtenue avec ce spectromètre est présentée en figure 2.28(a). On peut reconnaître un spectre selon l'axe horizontal, et l'axe vertical nous donne une information spatiale sur la source. Une calibration de l'instrument a été réalisée dans le cadre d'une collaboration avec le Groupe de Physique des Solides de Jussieu, à l'aide d'un détecteur à semi-conducteurs en 2002. La confrontation avec la mesure absolue du nombre de photons a permis de corroborer l'évaluation faite de notre spectromètre : la mesure réalisée avec le calcul déduit de  $R_{int}$  avait un écart inférieur à 20 % avec la mesure absolue.

<sup>1</sup>[http://www.cxro.lbl.gov/optical\\_constants/filter2.html](http://www.cxro.lbl.gov/optical_constants/filter2.html)



(a) Réflectivité intégrée en fonction de l'ordre de diffraction pour un cristal de muscovite plan (plan 001) pour un angle de Bragg  $\theta_B = 53,6^\circ$ .

(b) Transmission d'un filtre composé de 8  $\mu\text{m}$  de béryllium.

(c) Efficacité quantique de détection de la caméra CCD utilisée avec le spectromètre.

**Fig. 2.27:** *Réflectivité intégrée pour différents ordres, transmission du filtre et efficacité quantique de détection de la caméra.*

Les travaux de calibration en absolu ayant été présentés, nous pouvons nous concentrer directement sur le spectre obtenu, présenté en figure 2.28(b). Le spectre a été étalonné à l'aide de bases de données où sont référencées les énergies de transitions entre les différents états en fonction de la configuration électronique (voir par exemple l'adresse électronique du laboratoire *Center for Astrophysics* de Harvard<sup>2</sup>). Nous pouvons reconnaître comme indiqué sur la figure les différentes raies de transition (voir la section 1.3.4 pour plus de détails), correspondant à des états de charge différents : de  $\text{Ar}^{10+}$  à  $\text{Ar}^{16+}$  pour la gamme énergétique allant de 2,98 keV à 3,15 keV. Les raies indiquées pour cette gamme en énergie sont obtenues pour une réflexion d'ordre 4 sur le cristal. On voit dans la relation de Bragg (Cf. équation 2.23) que d'autres longueurs d'onde peuvent être réfléchies selon d'autres ordres de diffraction au même angle. La raie  $\text{He}_\beta$  située à 2,95 keV a été obtenue par un ordre de diffraction différent (ordre 5). Aussi, l'énergie réelle correspondant à cette raie observée à l'ordre 4 vaut :

$$\text{Énergie réelle} = \frac{\text{Ordre de diffraction réel}}{4} \times \text{Énergie observée}$$

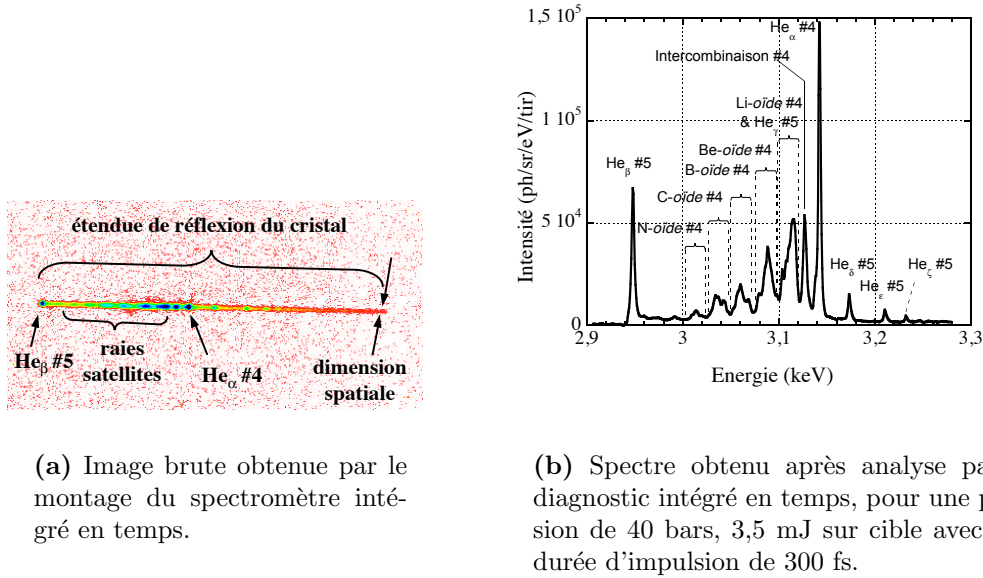
en supposant un ordre 4 d'observation.

Pour l'exemple choisi, nous retrouvons bien l'énergie de la raie  $\text{He}_\beta$  à 3,69 keV avec un facteur 5/4.

Nous venons de présenter les principales caractéristiques du spectromètre haute résolution que nous avons employé. Il nous a permis d'avoir une référence absolue et spectrale de la source pendant les différentes expériences.

<sup>2</sup><http://cfa-www.harvard.edu/amdata/ampdata/kelly/kelly.html>





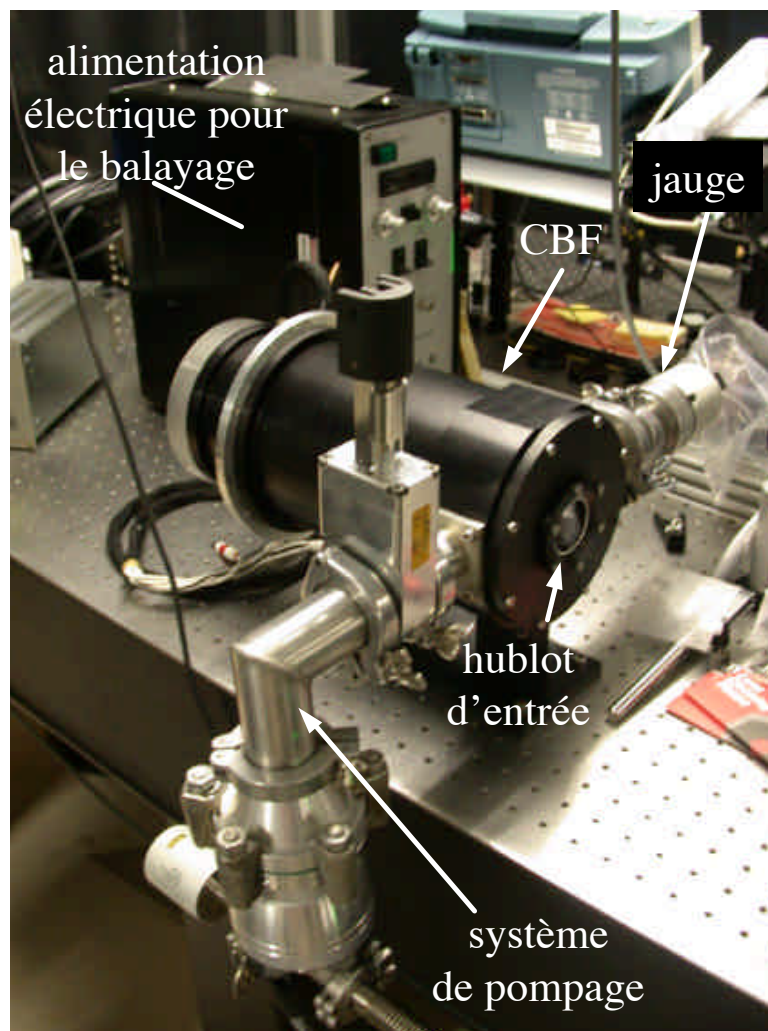
**Fig. 2.28:** Spectromètre haute résolution (#4 et #5 indiquent les ordres de réflectivité à l'ordre 4 et 5). À gauche : image brute. À droite : spectre absolu obtenu après analyse.

### 2.4.5 Détection X ultra-rapide

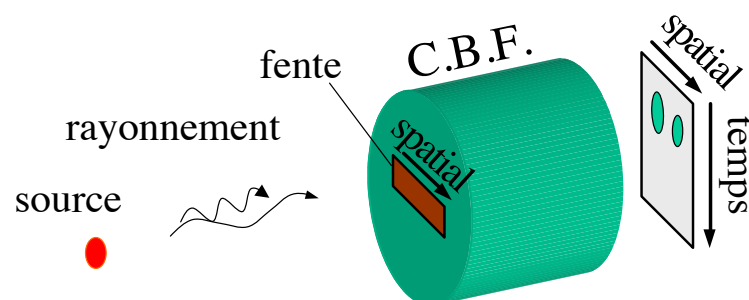
Le système de détection X ultra-rapide est constitué d'une caméra à balayage de fente, dont le principe et les caractéristiques sont détaillés au chapitre suivant. Elle offre une double résolution spatiale (le long de sa fente d'entrée) et temporelle. Nous présentons ici les deux modes de fonctionnement selon lesquels nous avons utilisé ce diagnostic. Une photographie de la caméra à balayage de fente (CBF) est présentée en figure 2.29. Une jauge est ajoutée au montage pour s'assurer du vide à l'intérieur du dispositif. Le système de pompage est constitué d'une pompe secondaire, en série avec une pompe primaire (non représentée).

Le schéma présenté en figure 2.30 représente l'utilisation de la caméra à balayage de fente sans résolution spectrale. Le signal émis par une source est directement collecté par la caméra à balayage le long d'une fente.

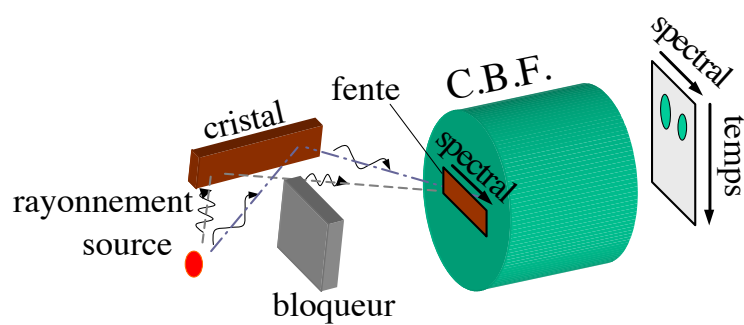
Le schéma présenté en figure 2.31 représente l'utilisation de la caméra à balayage de fente avec une résolution spectrale. Le signal collecté le long de la fente d'entrée de la caméra à balayage de fente est là aussi résolu en temps. Cependant, l'association de la caméra avec un cristal permet de faire correspondre à chaque position en entrée le long de l'axe spatial une valeur spectrale : aussi, nous obtenons en sortie un spectre résolu en temps. Un bloqueur est représenté pour signaler la coupure du signal qui irait directement de la source à la fente, sans être diffracté par le cristal.



**Fig. 2.29:** Photographie de la caméra à balayage de fente.



**Fig. 2.30:** Schéma d'utilisation de la caméra à balayage de fente, avec une résolution temporelle seule.



**Fig. 2.31:** Schéma d'utilisation de la caméra à balayage de fente, avec une double résolution temporelle et spectrale.

## Bibliographie Chapitre 2

- [Arno *et al.* 95] Arno J. et Bevan J.W.,  
*Jet spectroscopy and molecular dynamics*, Chapman and Hall Ltd ed.,  
Blackie Academic and Professional, London, 1995.
- [Bagnoud *et al.* 00] Bagnoud V. et Salin F.,  
*Amplifying laser pulses to the terawatt level at a 1-kilohertz repetition  
rate*, Appl. Phys. B **70** [Suppl.] (2000), S165–S170.
- [Bastiani 98] Bastiani S.,  
*étude et optimisation de l'émission X d'un plasma créé par une im-  
pulsion laser ultra-courte*, Thèse de doctorat, École polytechnique,  
11 Juin 1998.
- [Bell *et al.* 93] Bell A.J., Mestdagh J.M., Berlande J., Biquard X., Cuvellier J., Lal-  
lement A., Meynadier P., Sublemontier O. et Visticot J.-P.,  
*Mean cluster size by Rayleigh scattering*, J. Phys. D : Appl. Phys. **26**  
(1993), 994–996.
- [Blasco *et al.* 01] Blasco F., Stenz C., Salin F., Faenov A.Ya., Magunov A.I., Pikuz  
T.A. et Skobelev I.Yu.,  
*Portable, tunable, high-luminosity spherical crystal spectrometer with  
an x-ray charge coupled device, for high-resolution x-ray spectromi-  
croscopy of clusters heated by femtosecond laser pulses*, Rev. Sci. Ins-  
trum. **72** (2001), no. 4, 1956–1962.
- [Bockatsen 61] Bockatsen K.,  
*Transformation of observed radiances into radial distribution of the  
emission of a plasma*, Journal of the Society of America **51** (1961),  
943.
- [Boldarev *et al.* 01] Boldarev A.S., Gasilov V.A., Blasco F., Stenz C., Dorchiev F., Salin  
F., Faenov A.Ya., Pikuz T.A., Magunov A.I. et Skobelev I.Yu.,  
*Modeling cluster jets as targets for high-power ultrashort laser pulses*,  
JETP Lett. **73** (2001), no. 10, 514–518.
- [Born *et al.* 96] Born M. et Wolf E.,  
*Principles of optics*, 6<sup>th</sup> ed., Cambridge University Press, 1996.
- [Bush *et al.* 98] Bush A.M., Bell A.J., Frey J.G. et Mestdagh J.-M.,  
*Rayleigh scattering of laser and synchrotron radiation from pulsed  
free jets of Ar<sub>n</sub> and (N<sub>2</sub>O)<sub>n</sub> clusters*, J. Phys. Chem. A **102** (1998),  
6457–6463.

- [Caillaud 04] Caillaud T.,  
*Etude expérimentale de l'interaction laser-agrégats : Absorption, Chauffage, Emission X - Vers la réponse de l'agrégat unique*, Thèse de doctorat, Université Bordeaux I, Septembre 2004.
- [Dorchies *et al.* 03] Dorchies F., Blasco F., Caillaud T., Stevefelt J., Stenz C., Boldarev A.S. et Gasilov V.A.,  
*Spatial distribution of cluster size and density in supersonic jets as targets for intense laser pulses*, Phys. Rev. A **68** (2003), 023201–1–8.
- [Dorchies *et al.* 05] Dorchies F., Caillaud T., Blasco F., Bonté C., Jouin H., Micheau S., Pons B. et Stevefelt J.,  
*Investigation of laser-irradiated Ar cluster dynamics from K-shell x-ray emission measurements*, Phys. Rev. E **71** (2005), 066410–1–8.
- [Drake 96] Drake G.W. (ed.),  
*Atomic, molecular and optical physics handbook*, Springer-Verlag, New-York, 1996.
- [Farges *et al.* 81] Farges J., de Feraudy M.F., Raoult B. et Torchet G.,  
*Structure and temperature of rare gas clusters in a supersonic expansion*, Surface Science **106** (1981), no. 1-3, 95–100.
- [Hagena *et al.* 72] Hagena O.F. et Obert W.,  
*Cluster formation in expanding supersonic jets : Effect of pressure, temperature, nozzle size, and test gas*, J. Chem. Phys. **56** (1972), no. 5, 1793–1802.
- [Hagena 92] Hagena O.F.,  
*Cluster ion sources*, Rev. Sci. Instrum. **63** (1992), no. 4, 2374–2379.
- [Hölzer *et al.* 98] Hölzer G., Wehrhan O., Heinisch J., Förster E., Pikuz T.A., Faenov A.Ya., Pikuz S.A., Romanova V.M. et Shelkovenko T.A.,  
*Flat and spherically bent muscovite (mica) crystals for x-ray spectroscopy*, Physica Scripta **57** (1998), no. 2, 301–309.
- [Joffre 98] Joffre M.,  
*Propagation linéaire et non linéaire d'une impulsion ultrabrève, cours dispensé à l'ensta*, 1993-1998.
- [Malka *et al.* 00] Malka V., Coulaud C., Geindre J.P., Lopez V., Najmudin Z., Neely D. et Amiranoff F.,  
*Characterization of neutral density profile in a wide range of pressure of cylindrical pulsed gas jets*, Rev. Sci. Instrum. **71** (2000), no. 6, 2329–2333.

# Chapitre 3

## Caractérisation et calibration du détecteur X ultra-rapide

### Sommaire

---

<b>3.1</b>	<b>Présentation</b>	<b>97</b>
3.1.1	Détection X ultra-rapide	97
3.1.2	Caméra à balayage de fente	98
3.1.3	Description de notre système	100
<b>3.2</b>	<b>Caractérisation spatiale et temporelle</b>	<b>105</b>
3.2.1	Montage expérimental	105
3.2.2	Caractéristiques de l'imagerie du tube	106
3.2.2.1	Axe spatial	107
	Grandissement spatial	107
	Résolution spatiale	107
	Comparaison avec la littérature	108
3.2.2.2	Axe temporel	110
	Focalisation de la trace le long de l'axe temporel	110
3.2.2.3	Courbure statique de la trace	111
3.2.2.4	Homogénéité	111
	Homogénéité selon l'axe spatial	111
	Homogénéité selon l'axe temporel	112
3.2.2.5	Surface de collection	114
3.2.3	Caractéristiques temporelles du tube	115
3.2.3.1	Courbure dynamique de la trace	115
3.2.3.2	Résolution temporelle	118
	Contribution de la Fonction d'Étalement de Ligne	118
	<i>Focalisation selon l'axe temporel</i>	118
	<i>Vitesse de balayage</i>	119
	Contribution de la dispersion des électrons émis par la photocathode	121
	<i>distribution angulaire</i>	121

---

	<i>distribution énergétique</i> . . . . .	121
	<i>dispersion totale</i> . . . . .	123
	Contribution de l'effet de charge d'espace . . . . .	124
	Contribution de la gigue . . . . .	124
	Convolution des contributions . . . . .	124
3.2.4	Détection en mode récurrent . . . . .	125
3.2.4.1	Gigue temporelle . . . . .	125
3.2.4.2	Comportement selon l'énergie de l'impulsion de déclenche	126
3.2.4.3	Optimisation . . . . .	127
<b>3.3</b>	<b>Gamme dynamique et seuils de détection</b> . . . . .	<b>129</b>
3.3.1	Saturation de la photocathode . . . . .	129
3.3.2	Effet de charge d'espace . . . . .	130
	Rayon équivalent . . . . .	132
	Nombre d'électrons . . . . .	132
3.3.3	Bruit de la CCD et gamme dynamique . . . . .	134
3.3.4	Utilisation d'un amplificateur de luminescence . . . . .	135
	3.3.4.1 Principe . . . . .	135
	3.3.4.2 Gains . . . . .	136
	3.3.4.3 Bruit . . . . .	138
	3.3.4.4 Seuil de détection . . . . .	139
<b>3.4</b>	<b>Résolution spectrale: couplage avec un cristal</b> . . . . .	<b>140</b>
3.4.1	Montage . . . . .	140
3.4.2	Réfectivité . . . . .	142
3.4.3	Focalisation . . . . .	143
3.4.4	Dispersion spectrale et temporelle . . . . .	144
	3.4.4.1 Dispersion spectrale . . . . .	144
	3.4.4.2 Dispersion temporelle . . . . .	144
3.4.5	Résolution spectrale . . . . .	145
<b>3.5</b>	<b>Calibration absolue dans les X</b> . . . . .	<b>146</b>
<b>3.6</b>	<b>Mise en œuvre</b> . . . . .	<b>147</b>
3.6.1	Système sous vide . . . . .	147
3.6.2	Système de déclenches . . . . .	148
3.6.3	Méthode de reconstruction du spectre résolu en temps . . . . .	149
<b>3.7</b>	<b>Bilan du système de détection</b> . . . . .	<b>151</b>
	<b>Bibliographie 3</b> . . . . .	<b>153</b>

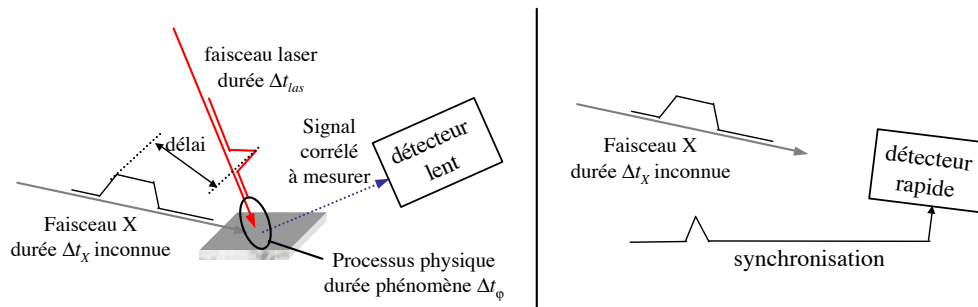
---

## 3.1 Présentation

### 3.1.1 Détection X ultra-rapide

Avant de présenter la structure du chapitre, il est nécessaire de situer notre système de détection parmi les méthodes et techniques existantes permettant de mesurer la durée du rayonnement X avec une résolution temporelle de l'ordre de ou inférieure à la picoseconde, en explicitant les intérêts et défauts de chacune [Rousse *et al.* 01].

Afin de caractériser en temps une émission X, il existe deux approches différentes, comme illustré en figure 3.1 : une approche indirecte, basée sur une technique dite pompe-sonde, et une approche directe, utilisant un détecteur rapide.



**Fig. 3.1:** Schéma de principe des expériences de chronoscopie. À gauche : On fait varier le délai entre une impulsion X et un faisceau pompe. Le signal corrélé est mesuré avec un détecteur à temps de réponse lent. À droite : L'impulsion X est mesurée directement avec un détecteur ultra-rapide.

#### Approche indirecte

Le principe de cette technique est le suivant. Un faisceau principal est scindé en deux faisceaux, à l'aide d'une lame séparatrice (Cf. Fig. 3.1, encart de gauche). Ces deux faisceaux ont un écart temporel qui est contrôlé par l'ajustement du trajet optique suivi, à l'aide d'une platine de translation sur une ligne à retard par exemple. Le premier faisceau est converti en rayonnement X, et nous voulons mesurer la durée d'émission de ce rayonnement. Le second faisceau initie un phénomène physique, dont la durée est  $\Delta t_\phi$ , qui permet de sélectionner le rayonnement X. Ce phénomène peut être un changement d'état du milieu ou bien d'excitation, par excitations atomiques via les électrons ou vibrationnelles via les phonons par exemple (Cf. Introduction générale). On mesure alors le signal de corrélation entre l'impulsion X et le phénomène physique mis en jeu : il peut s'agir d'une déviation angulaire par exemple dans le cas de la diffraction du rayonnement X par un réseau perturbé [Fourmaux 02]. On parcourt les différents délais entre les deux impulsions pour obtenir le comportement du système à différents moments, et l'ensemble des acquisitions nous permet de mesurer un signal dont la durée correspond à la corrélation de la durée  $\Delta t_X$  du rayonnement X et la durée  $\Delta t_\phi$  du phénomène physique initié par le laser.



Pour la plupart des phénomènes qui peuvent être envisagés afin d'obtenir une résolution temporelle suffisamment brève ( $\leq 1$  ps), la durée du processus n'est pas encore parfaitement déterminée. Aussi, en mesurant la corrélation du rayonnement X avec le phénomène mis en jeu, nous pouvons déterminer la durée maximale entre  $\Delta t_X$  et  $\Delta t_\varphi$ . La résolution temporelle du rayonnement X est limitée par le choix du phénomène physique choisi pour réaliser la corrélation. Une résolution de 250 fs a déjà pu être obtenue par Feurer [Feurer *et al.* 01] et ses collaborateurs.

Par cette approche, la détermination de la durée d'un rayonnement X nécessite de réaliser au préalable un montage spécifique adapté au phénomène physique choisi pour la corrélation, ce qui rend la mesure de la durée assez complexe.

### Approche directe

On peut observer directement le rayonnement X à l'aide de différents détecteurs. Shiraishi [Shiraishi *et al.* 02] a utilisé des photodiodes sensibles au rayonnement X généré lors de l'interaction entre une impulsion laser (120 fs, 800 nm, 70 mJ) et des agrégats de xénon. La résolution temporelle accessible est limitée par le module d'échantillonnage rapide, et permet d'atteindre une résolution de 100 ps. Ce type de diagnostic ne résout pas en spectre, bien que l'on puisse imaginer une rampe de photodiodes pour obtenir une information spatiale, ou bien spectrale.

On peut aussi citer le tube à images intégrales (dit aussi tube obturateur) [Gontier *et al.* 99], avec un fonctionnement similaire à une caméra à balayage de fente, qui permet d'obtenir une image toutes les 100 ps avec un temps de pose inférieur à 90 ps.

Il existe un autre type d'instrument, dénommé caméra à balayage de fente ("*streak camera*"), qui permet d'obtenir directement l'évolution temporelle d'une impulsion X en une seule séquence. Cet instrument permet d'obtenir une résolution temporelle de l'ordre de la picoseconde ou sub-picoseconde, en offrant une résolution spatiale suivant un axe. C'est ce type d'instrument qui constitue le cœur de notre système de détection X ultra-rapide, et nous le présentons aux sections suivantes.

### 3.1.2 Caméra à balayage de fente

On peut faire remonter l'origine de la caméra à balayage de fente (CBF ou SC pour "*Streak Camera*") à J. S. Courtney-Pratt, qui introduisit la première fois un système de déflexion dans un tube convertisseur d'image (*Image Converter Tube*). Un tube convertisseur d'image transforme un signal lumineux en signal électronique : une zone de conversion (une photocathode) est illuminée par des photons qui sont convertis en proportion en électrons. La zone d'acceptance de l'instrument est réalisée le long d'une fente. En appliquant un champ électrique dépendant du temps, perpendiculairement à la fente d'entrée, le signal collecté le long de la fente peut être défléchi selon l'axe du champ électrique. Aussi, l'étalement du signal selon l'axe du champ électrique nous permet d'avoir une résolution temporelle. C'est ce type d'instrument qui a été choisi pour constituer l'élément central de notre système de détection X ultra-rapide.

L'utilisation de la caméra à balayage de fente peut s'effectuer selon un mode monocoup ou un mode dit récurrent. Pour le mode récurrent, on répète plusieurs fois la même expérience pour cumuler le signal, et accroître le rapport signal sur bruit. Ceci permet d'observer des sources qui émettent peu de rayonnement, à condition de disposer d'une source X de haute cadence. Le fait de répéter la même mesure sur la même expérience peut induire une diminution de la résolution temporelle : de tir à tir, le balayage du signal n'est pas rigoureusement synchrone. On parle de gigue temporelle, ou "*jitter*" en anglais.

Nous indiquons ici quelques résultats nous permettant de voir l'évolution de la résolution temporelle obtenue avec une caméra à balayage de fente pour ces 30 dernières années, en mode monocoup, et de rendre compte de l'intérêt pour cet instrument à travers le monde pour des gammes énergétiques correspondant au visible jusqu'aux X :

- 1975, Imperial College (Grande-Bretagne) : résolution temporelle de l'ordre de 22 ps [Bradley *et al.* 75]
- 1982, CEA-Limeil : résolution théoriquement accessible : 2 ps [Boutry *et al.* 82]
- 1987, Hamamatsu (Japon) : tube de caméra avec 500 fs de résolution temporelle [Kinoshita *et al.* 87]
- 1990, Berkeley (USA) : 2 ps monocoup [Murnane *et al.* 90]
- 1995, Lawrence Livermore National Laboratory (USA) :  $\sim 900$  fs [Shepherd *et al.* 95]
- 1996, Université du Michigan (USA) et l'Institut Xi'an (Chine) : 0,9 ps [Chang *et al.* 96] [Maksimchuk *et al.* 96]
- 1996, Université Louis Pasteur (Strasbourg) : inférieure à 500 fs [Reinke 96]
- 1997, I.N.R.S., Varennes (Canada) : 750 fs [Gallant *et al.* 97]
- 2003, Institut de Physique Générale (Moscou) : 200 fs [Losovoi *et al.* 03] puis [Degtyareva *et al.* 04]
- 2004, Kansas University (USA) : 350 fs [Shakya *et al.* 04] puis 280 fs (grâce à l'ajout d'une fente additionnelle entre la fente d'extraction et la lentille quadrupolaire) [Shakya *et al.* 05] (mais diminuant de manière conséquente la quantité de signal à mesurer)

En plus des références indiquées ci-dessus, nous pouvons mentionner la participation de nouveaux pays dans l'élaboration de nouvelles caméras, à savoir :

- 2001, Plasma Radiation Section, Centre for Advanced Technology, Indore (Inde) : 7,5 ps avec marquage temporel ("*fiducial time*") [Chakera *et al.* 01]
- 2002, Shen Zhen University (Chine) : plusieurs images ("*framing*") à l'aide d'une caméra à balayage de fente, avec une résolution temporelle meilleure que 6,3 ps [Ji *et al.* 02]

Par ailleurs, des utilisations moins conventionnelles sont envisagées, comme la résolution temporelle de paquet d'ions [Kravchenko *et al.* 04], ou encore des profils temporels en sortie circulaires [Kalibjian *et al.* 74] ou bien en spirale permettant d'obtenir une résolution sub-ps avec une durée totale de 10 ns [Bak *et al.* 01]. Une introduction tout à fait générale aux caméras à balayage est présentée à la référence [Gontier *et al.* 99].

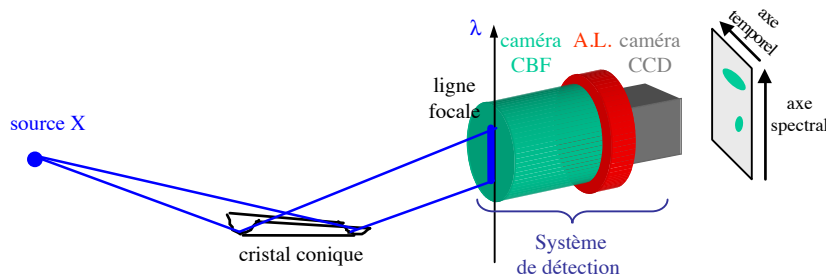
Malgré le nombre croissant d'équipes s'intéressant aux caméras à balayage de fente, la résolution temporelle semble avoir atteint ses limites en l'état actuel de la technique. Cependant, l'étendue de son utilisation peut encore progresser, notamment en mode récurrent. En effet, ce mode d'utilisation permet d'augmenter significativement le rapport signal sur bruit, comme nous le verrons plus loin. Pour ce mode d'utilisation, nous pou-

vons indiquer le travail des équipes suivantes, relatif à la détermination de la durée de rayonnement X :

- 1997 et 1999, Institut de Technologie, Lund (Suède) : Mesure de la durée de l'impulsion X rayonnée par un synchrotron [Larsson *et al.* 97] et étude de l'interaction laser-plasma [Larsson *et al.* 99].
- 2000, I.N.R.S., Varennes (Canada) : mise au point de caméras à balayage de fente utilisables en mode récurrent [Gallant *et al.* 00] pour l'étude de la dynamique de plasmas créés par laser [Gallant *et al.* 03].
- 2003, Institut d'Optique Quantique, Garching (Allemagne) : étude de plasmas denses, comme le décalage spectral induit par un chauffage isochore [Eidmann *et al.* 03], ou l'importance du gradient de densité sur la durée de rayonnement X [Pisani *et al.* 04].

### 3.1.3 Description de notre système

Notre système de détection X ultra-rapide est constitué (Cf. Fig. 3.2) d'un cristal qui permet d'étaler le rayonnement issu de la source en fonction de sa longueur d'onde, puis le signal est sélectionné par une fente. Les photons sont convertis en électrons au niveau d'une photocathode, en entrée de la caméra à balayage de fente. Les électrons sont alors focalisés en sortie de la caméra CBF sur un phosphore, ce qui permet de transformer à nouveau le signal, mais cette fois d'électrons en photons pour pouvoir être quantifiés par une caméra CCD. Si le signal est trop faible, il peut être amplifié par un amplificateur de luminescence (A.L.), inséré entre la sortie de la caméra à balayage de fente et la caméra CCD.



**Fig. 3.2:** Schéma du dispositif de détection X ultra-rapide, couplé avec un cristal de Bragg.

La caméra à balayage de fente utilisée a été développée en collaboration avec J.-C. Kieffer, V. Pitre et S. Magnan, de l'Institut National de la Recherche Scientifique (I.N.R.S.-ÉMT), à Varennes au Canada. La caméra à balayage développée a la particularité d'avoir un tube bilamellaire (de la société Photonis, à Brive en France) permettant de réduire les effets de répulsion électrostatique des paquets électroniques (Cf. section 3.3.2), ainsi qu'une conception adaptée aux courbures du signal (inhérentes à la propagation des électrons dans le tube).

S'agissant d'un prototype (caméra dite "FX"), une étude extensive du comportement de l'instrument était nécessaire avant une quelconque utilisation. Par ailleurs, comme nous le verrons par la suite, la résolution temporelle en mode récurrent est dépendante de la

stabilité en énergie des impulsions laser : aussi l'installation d'une caméra à balayage de fente sur une chaîne laser ne peut s'affranchir d'un travail de calibration. Cette étude a été réalisée, et nous en présentons la méthode et les résultats dans les sections suivantes. Les efforts de caractérisation menés nous ont permis de calibrer en absolu la caméra à balayage de fente, ainsi que le système de détection X ultra-rapide dans son ensemble.

Le fonctionnement d'un tube de caméra à balayage de fente (CBF) peut être décomposé en plusieurs parties (Cf. Fig. 3.3). Tout d'abord, l'entrée du tube de la caméra à balayage de fente est composé d'une *photocathode*, qui convertit les photons incidents en électrons. Les photons arrachent des électrons, et ces photo-électrons (électron primaires) transmettent à leur tour leur énergie en arrachant des électrons (électrons secondaires). Ces électrons se trouvent avec une énergie pratiquement nulle en surface de la photocathode. Plus précisément, ces électrons ont une distribution en énergie (autour de l'électron-Volt), et cette distribution en énergie est indépendante de l'énergie des photons X incidents (caractéristique de la photocathode).

Il est alors facile d'extraire les électrons en surface à l'aide d'un champ électrique. Pour ce faire, la photocathode est portée à une forte tension ( $\sim -15$  kV), tandis qu'une fente (située à une distance  $d$  en général  $\sim 2$  mm de la photocathode), est gardée à un potentiel nul : il s'établit alors un champ électrique élevé qui permet d'arracher les électrons de la photocathode, et de les projeter sur un écran luminescent en sortie de la caméra à balayage de fente.

Ces électrons sont pendant le transport imagés par un système de lentilles électrostatiques. C'est ce qui constitue l'imagerie spatiale de l'instrument. Les électrodes permettent d'ajuster l'ouverture du système ainsi que la focalisation, au moyen de tensions appliquées :  $V_{O2}$  pour ouverture,  $V_{F2}$  pour focalisation et  $V_{LQ}$  pour lentille quadrupolaire.

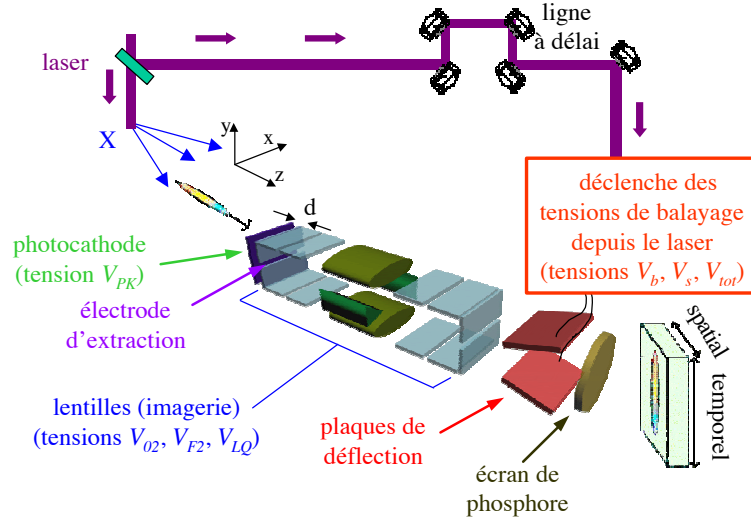
En fin de ce transport dans l'instrument, les électrons sont dispersés selon l'axe temporel au niveau de *plaques de déflexion* (portées à une tension rapidement variable de quelques kilo-Volts d'amplitude) : un champ électrique transverse à l'axe constitué par la fente permet de différencier les électrons du front avant des électrons du front arrière. Ces plaques de déflexion constituent l'élément principal du balayage temporel de l'instrument.

Les différents paramètres accessibles du tube de la caméra FX sont :

- la nature de la photocathode (avec différents rapports de conversion d'électrons par photon incident),
- la distance  $d$  entre la photocathode et la fente d'extraction, ainsi que la largeur  $l_f$  de la fente ( $l_f \sim 1$  mm),
- la tension  $V_{PK}$  appliquée sur la photocathode,
- les tensions appliquées au système d'imagerie ( $V_{O2}$ ,  $V_{F2}$  et  $V_{LQ}$ ).

Lors de l'utilisation en mode récurrent, il faut répéter l'opération un grand nombre de fois avec le meilleur synchronisme possible : c'est pourquoi le signal de déclenche des rampes de tension est directement couplé à l'impulsion laser à l'aide de commutateurs électro-optiques (déclenchés par une impulsion laser dite "de déclenche" prélevée sur l'im-

pulsion laser principale).



**Fig. 3.3:** Schéma en vue éclatée d'une caméra à balayage de fente.

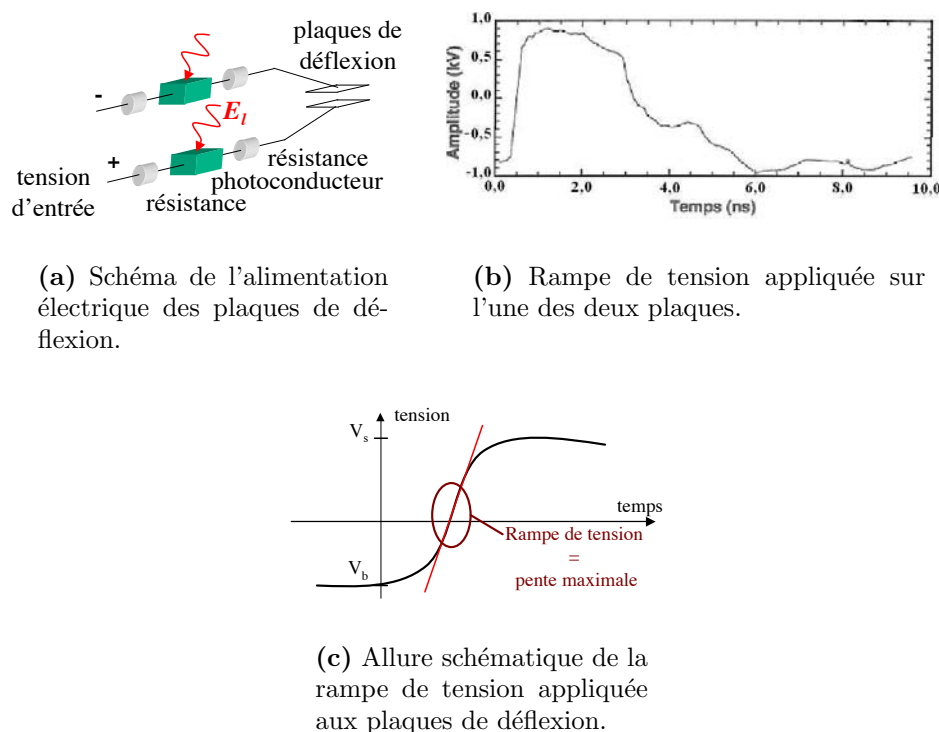
Ce système de commutateur "tout optique" a été développé par la société Fastlite, à Palaiseau en France. Il est constitué de résistances photo-sensibles (Cf. Fig. 3.4(a)). Ces commutateurs opto-électroniques [Mourou *et al.* 79] permettent ainsi d'atteindre une stabilité sub-picoseconde. Les expériences de caractérisation présentées ici permettent de comprendre comment minimiser et contrôler la gigue temporelle résiduelle en mode récurrent.

Une rampe de tension appliquée sur une plaque de déflexion est présentée en figure 3.4(b). On peut voir que, rapidement après le flanc de montée, la tension fluctue et décroît pour reprendre sa valeur initiale après quelques nanosecondes. La sensibilité des commutateurs optiques à l'énergie lumineuse incidente (effet photo-résistif) oblige à s'assurer de la qualité du faisceau laser de déclenchement : absence de taches/grains (*speckles*) et atténuation de pré-impulsion.

Les différents paramètres accessibles pour le contrôle de la rampe de tension de balayage sont :

- la tension  $V_{tot}$  appliquée sur les plaques de déflexion.  $V_{tot}$  est la somme (Cf. Fig. 3.4(c)) de  $|V_b|$  ("bias"), précharge des plaques de déflexion, et de  $V_s$  ("sweep"), tension finale de la rampe. Les deux tensions concourent à former une rampe de tension qui varie très rapidement en temps,
- l'énergie laser appliquée sur les commutateurs optiques commandant la tension sur les plaques de déflexion.

Nous présentons au tableau 3.1 les différentes propriétés de la caméra à balayage de fente que nous cherchons à définir. Les différents phénomènes à l'origine de ces propriétés sont indiqués dans la deuxième colonne. Enfin, la dernière colonne indique les paramètres réglables permettant de contrôler ces phénomènes. Nous pouvons voir que les relations



**Fig. 3.4:** Schéma du montage d'alimentation des rampes de tension et profil temporel de la tension appliquée.

des propriétés avec les paramètres expérimentaux sont nombreuses et croisées.

Pour illustrer la lecture du tableau, nous détaillons ici la première propriété indiquée. La résolution spectrale du système de détection dépend de :

- la dispersion spectrale du cristal : les paramètres réglables sont ici essentiellement de nature géométrique, tels que les distances choisies pour la position du cristal, l'ordre de diffraction, la nature du cristal (distance interplanare),
- la résolution spatiale de la caméra CBF, et le grandissement spatial de la caméra CBF : pour ces deux origines distinctes, les contributions sont fixées par construction et sont inhérentes au tube CBF,
- la résolution spatiale de la caméra CCD : il n'y a ici pas de paramètre réglable, puisqu'elle est liée à une propriété intrinsèque de la caméra CCD, à savoir la taille de ses pixels.

L'amplificateur de luminescence, qui sera présenté en section 3.3.4, n'est pas pris en considération ici. L'insertion de cet instrument modifie les résolutions spectrale et temporelle. Cette insertion modifie aussi le seuil de détection de notre système de détection.

L'effet de charge d'espace contribue à la dégradation de la résolution temporelle. Nous avons choisi de le mentionner dans la ligne "gamme dynamique" puisqu'il induit une limitation du signal incident si on souhaite garder sa contribution à la résolution temporelle négligeable devant les autres contributions.

Le plan pour le reste de ce chapitre est le suivant. Une première section présente les caractérisations relatives aux propriétés spatiale et temporelle de la caméra à balayage de

Propriétés du détecteur	Origines	Paramètres de réglage
Résolution spectrale	Dispersion spectrale du cristal Résolution spatiale de la CBF Grandissement spatial de la CBF Résolution spatiale de la CCD	Géométrie du montage Intrinsèque au tube CBF Intrinsèque au tube CBF Intrinsèque CCD
Résolution temporelle	Gigue temporelle Vitesse de balayage Focalisation sur axe temporel Champ d'extraction Résolution spatiale de la CCD	Stabilité et contraste temporel des impulsions laser de déclenche Tensions de la photocathode et des plaques de déflexion Tensions CBF Distance $d$ + tension $V_{PK}$ Intrinsèque CCD
Gamme dynamique	Effet de charge d'espace (CBF) Saturation de la CBF Saturation de la CCD Bruit sur CCD	Intensité signal incident + nature photocathode Photocathode + tension $V_{PK}$ et distance $d$ Intrinsèque CCD Temps de pose CCD
Efficacité de détection	Réfectivité du cristal Surface de collection de la CBF Transmission du tube Efficacité CCD	Intrinsèque au cristal Largeur fente d'extraction + tension $V_{PK}$ Intrinsèque tube Gain CCD

**Tab. 3.1:** *Récapitulatif des propriétés du détecteur X ultra-rapide, de leurs origines et de leur dépendance aux différents paramètres de réglage.*

fente (CBF) (Cf. section 3.2). Avec un montage expérimental spécifiquement réalisé, nous avons caractérisé le système d'imagerie du tube CBF, les propriétés temporelles liées au balayage et l'incidence du mode récurrent sur l'instrument. Ensuite, les caractéristiques liées au niveau de signal et de bruit sont présentées (Cf. section 3.3). Les comportements liés à la saturation de la photocathode, à l'effet de charge d'espace ou encore à l'insertion de l'amplificateur de luminescence y sont discutés. Le couplage de la caméra à balayage de fente avec un cristal tronç-conique est ensuite présenté (Cf. section 3.4), en détaillant notamment les propriétés de réflectivité et de focalisation du cristal ainsi que les dispersions induites. En étalonnant notre instrument avec le spectromètre X de haute résolution, nous avons pu établir une calibration absolue de notre système de détection dans le domaine des X, comme présenté en section 3.5. Enfin, les deux dernières sections présentent les principales particularités liées à la mise en œuvre du système de détection (Cf. section 3.6), et présentent de manière synthétique le bilan du système de détection et de ses éléments (Cf. section 3.7).

## 3.2 Caractérisation spatiale et temporelle

### 3.2.1 Montage expérimental

Pour caractériser le dispositif constitué de la CBF et de la caméra CCD, un montage fut spécialement réalisé. Il était nécessaire de disposer d'une source à la fois :

- compatible avec la gamme énergétique que la photocathode d'entrée de la CBF peut convertir en photo-électrons (longueur d'onde courte),
- émettant des impulsions ultra-brèves (plus courtes que la résolution temporelle attendue de la CBF – quelques centaines de femtosecondes à une picoseconde),
- synchronisée avec les impulsions laser de déclenche.

Pour atteindre ces trois objectifs, un doublage/triplage de fréquence a été réalisé à partir du faisceau principal. On peut voir sur la figure 3.5 le montage : le faisceau laser est dédoublé à l'aide d'une lame séparatrice. Une partie du faisceau illumine les commutateurs optiques (déclenche des rampes de tension de la CBF). Le délai d'arrivée est réglé par une ligne à retard (coin sur platine de translation). L'autre partie du faisceau est d'abord réduite en diamètre pour être doublée et triplée en fréquence grâce à des cristaux de BBO (borate de baryum). La réduction du diamètre du faisceau à  $\sim 5$  mm permet d'optimiser le doublage et le triplage de fréquence. En sortie du montage doubleur-tripleur, un prisme permet de séparer la fréquence triplée  $3\omega$ , du fondamental  $\omega$  ainsi que de la fréquence doublée  $2\omega$ . Un ensemble de trois miroirs, spécialement traités pour réfléchir la longueur d'onde  $3\omega$ , permet d'assurer le transport du faisceau jusqu'à la caméra à balayage de fente. Enfin, une lentille plano-cylindrique permet de focaliser sous forme d'une ligne le faisceau à  $3\omega$ .

L'utilisation de la caméra à balayage de fente nécessitant des champs électriques élevés entre la photocathode et la fente (la différence de potentiel est typiquement de 15 kV pour une distance de 2 mm), un vide poussé doit être réalisé (mieux que  $10^{-5}$  mbar). Nous avons employé pour cela une petite enceinte à vide, montée directement sur la CBF. Le signal laser triplé en fréquence se propageait à l'air. La nécessaire séparation des pressions et la transmission du faisceau sont réalisées au moyen d'un hublot en suprasil (nom commercial pour du verre en quartz synthétique). De la même façon, la focalisation du signal  $3\omega$  imposait pour la lentille cylindrique d'être en suprasil.

Les différents paramètres réglables du montage expérimental sont donc :

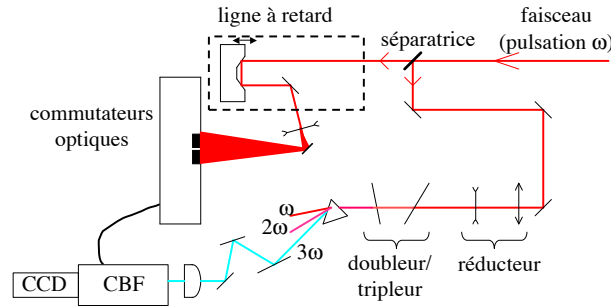
- l'énergie de l'impulsion lumineuse à  $3\omega$  (réglée à partir de l'angle d'une lame  $\lambda/2$  placée en amont d'un polariseur),
- la focalisation du faisceau en entrée d'instrument (tirage de la lentille plano-cylindrique),
- la position du signal focalisé sur la photocathode (platines de translation de la lentille plano-cylindrique),
- les tensions d'imagerie appliquées à la CBF (Cf. section 3.2.2),
- l'application ou non de rampes de tension de déflexion (mode statique/balayé),
- les tensions de déflexion appliquées à l'instrument (Cf. section 3.2.3),
- le délai temporel entre l'impulsion  $3\omega$  en entrée d'instrument et le déclenchement des rampes de tension de déflexion,



- l'énergie et le contraste pic/pied des impulsions de déclenche des rampes de tension de déflexion.

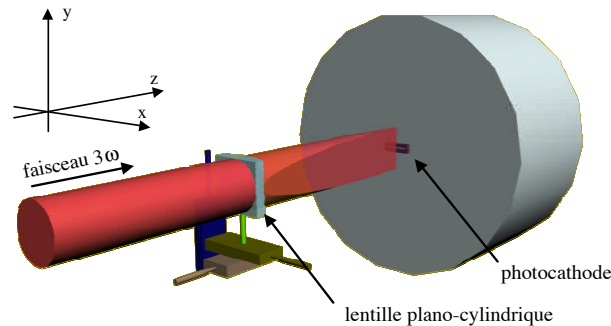
Nous pouvons observer en sortie d'instrument et pour chacun des deux axes :

- la position du signal,
- l'intensité du signal et le rapport signal/bruit,
- la largeur du signal.



**Fig. 3.5:** Schéma du dispositif utilisé pour la caractérisation de la caméra à balayage de fente à l'aide d'impulsions laser triplées en fréquence ( $3\omega$ ).

En figure 3.6 est présenté un détail du banc de caractérisation. Le faisceau  $3\omega$  (de la gauche vers la droite sur la figure) est focalisé selon une ligne au moyen d'une lentille plano-cylindrique. La rotation de la lentille (non représentée sur le schéma) permet d'avoir le faisceau focalisé en ligne perpendiculairement ou parallèlement à la photocathode de la caméra à balayage de fente (en réalité à la fente d'extraction située juste derrière). Deux platines de translation selon  $x$  et  $y$  permettent de contrôler la position de la ligne focale respectivement le long de et perpendiculairement à la photocathode. Une troisième platine de translation selon  $z$  permet de focaliser plus ou moins bien le faisceau  $3\omega$  sur le plan de la photocathode de la caméra à balayage de fente.



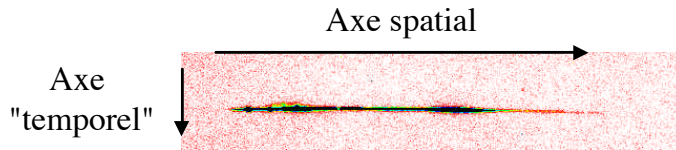
**Fig. 3.6:** Schéma du montage de caractérisation du grandissement spatial, de la résolution spatiale et de la surface de collection de la caméra CBF.

### 3.2.2 Caractéristiques de l'imagerie du tube

Nous présentons dans cette section les caractéristiques spatiales du détecteur liées à l'imagerie électrostatique du tube de la caméra à balayage de fente (CBF). Elles ont été

étudiées en mode statique (c'est-à-dire sans balayage).

Nous présentons en figure 3.7 un exemple d'image obtenue au moyen de la caméra à balayage de fente (CBF). Cette image a été obtenue en focalisant le faisceau laser parallèlement à la fente en entrée de la caméra à balayage de fente. On peut voir qu'il y a en sortie de l'instrument deux axes : un axe spatial et un axe dit temporel. L'axe spatial correspond à l'axe de la fente d'extraction et l'autre axe correspondant à un axe temporel lorsque l'on applique des rampes de tension de balayage.

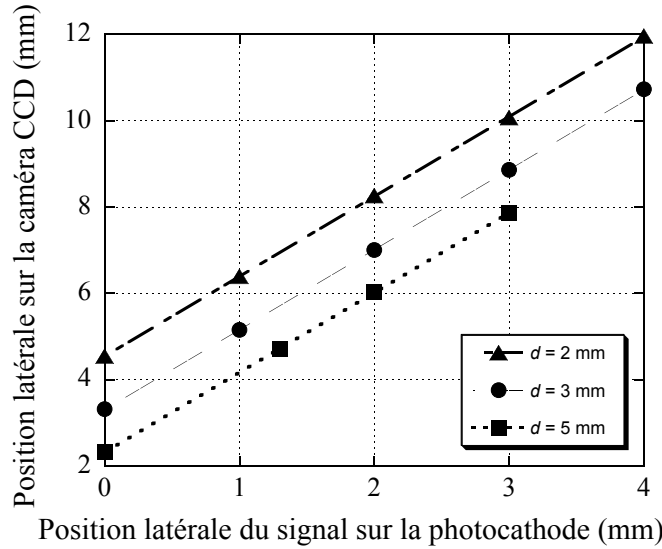


**Fig. 3.7:** Image obtenue en irradiant la caméra à balayage de fente avec du signal  $3\omega$ . L'axe spatial correspond à l'axe de la fente d'extraction, et l'autre axe correspond à l'axe temporel obtenu lors de l'application de rampes de tension de balayage.

### 3.2.2.1 Axe spatial

**Grandissement spatial** Pour déterminer la résolution spatiale de la caméra à balayage de fente, l'axe de focalisation de la lentille plano-cylindrique était perpendiculaire à la fente d'entrée de la caméra CBF (Cf. 3.6). Nous avons fait varier la position de la ligne focale le long de la photocathode (axe  $x$ ). Le procédé a été réalisé pour différentes valeurs de la distance  $d$  entre la photocathode et la fente d'extraction et pour différentes tensions d'extraction  $V_{PK}$ . Quelques résultats sont présentés en figure 3.8. Les courbes ont été décalées de manière arbitraire pour plus de clarté. La pente des différentes courbes nous donne directement le grandissement réalisé par la caméra CBF : le grandissement vaut  $\gamma_{sp} = 1,85 \pm 0,01$  selon l'axe spatial (axe  $x$ ). Il ne dépend ni de la distance  $d$  entre la photocathode et la fente d'extraction, ni de la valeur de la tension d'extraction  $V_{PK}$ . C'est une donnée du tube qui dépend de la géométrie des différentes électrodes le composant.

**Résolution spatiale** Afin de déterminer la résolution de l'instrument selon l'axe spatial, le même montage a été utilisé (axe de focalisation de la lentille plano-cylindrique perpendiculaire à la photocathode). Nous avons effectué un décalage du faisceau  $3\omega$  selon l'axe  $z$  (axe de propagation des impulsions) à l'aide d'une platine de translation. Nous avons réalisé cette opération avec la caméra CBF et sans la caméra CBF (directement sur la caméra CCD). Le résultat de ces deux opérations est présenté sur la figure 3.9. Nous observons une largeur minimale à mi-hauteur de  $30 \pm 5 \mu\text{m}$  lorsque l'on focalise au mieux le faisceau  $3\omega$  sur la CCD. Avec la caméra CBF, la largeur à mi-hauteur minimale mesurée est de  $44 \pm 2 \mu\text{m}$ . En déconvoluant ces résultats, nous pouvons obtenir la résolution de notre instrument : la résolution spatiale à mi-hauteur de la caméra à balayage de fente est de :  $32 \pm 9 \mu\text{m}$ . Nous avons observé que cette valeur ne dépendait ni de la distance  $d$  entre la photocathode et la fente d'extraction, ni de la tension d'extraction  $V_{PK}$ .



**Fig. 3.8:** Position en sortie (en mm sur la caméra CCD, selon l'axe spatial) en fonction de la position du signal en entrée (en mm, selon l'axe  $x$ ), pour différentes valeurs de distance fente-photocathode :  $d = 2$  mm (triangles),  $d = 3$  mm (ronds) et  $d = 5$  mm (carrés). Les courbes reliant les points sont les ajustements linéaires déterminant le grandissement pour chacune des distances fente-photocathode. Note : les positions sont relatives (droites décalées pour plus de clarté).

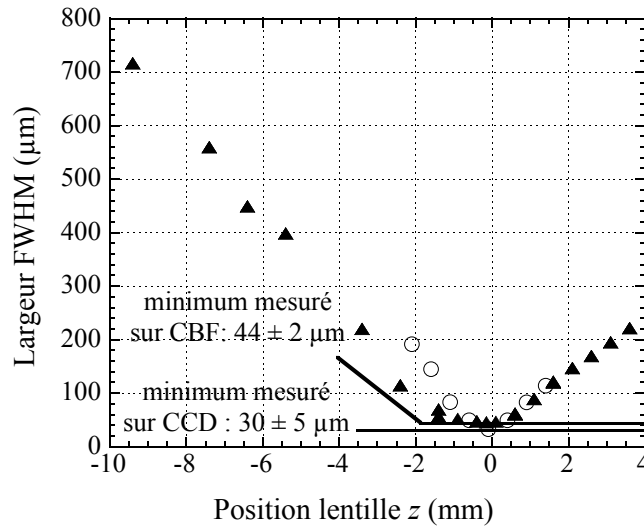
Cependant, il est à noter un phénomène : lors de l'application d'une rampe de tension sur les plaques de déflexion, la résolution est dégradée. En effet, même si la tension appliquée est nulle en moyenne dans le temps, les variations du champ électrostatique induites perturbent la propagation du faisceau d'électrons et dégradent les performances de l'instrument. La valeur que nous avons déterminée pour la résolution spatiale à mi-hauteur est donc de  $49 \pm 9 \mu\text{m}$ , en mode balayé. De nouveau, nous n'avons observé aucune dépendance avec la distance  $d$  et la tension d'extraction  $V_{PK}$ .

**Comparaison avec la littérature** Les performances de la caméra, en terme de résolution spatiale, sont généralement exprimées en représentant le contraste mesuré en fonction de la fréquence spatiale (lp/mm) d'un réseau de lignes placé sur la photocathode [Niu *et al.* 82]. La fonction de transfert de contraste (CTF : "contrast transfer function" [Jaanimagi *et al.* 88]) peut s'exprimer selon :

$$CTF = (I_{max} - I_{min}) / (I_{max} + I_{min}) \quad (3.1)$$

où  $I_{max}$  et  $I_{min}$  sont respectivement les valeurs maximale et minimale du signal mesuré.

Aussi, pour comparer nos résultats avec des résultats avancés par ailleurs, on peut



**Fig. 3.9:** *Largueur de la trace mesurée sur la CCD directement (ronds blancs) et avec la caméra CBF (triangles pleins) en fonction de la position de la lentille le long de l'axe focal (pour une origine de position correspondant au foyer sur la photocathode). Ces mesures sont effectuées avec  $d = 2$  mm et  $V_{pK} = 15$  kV.*

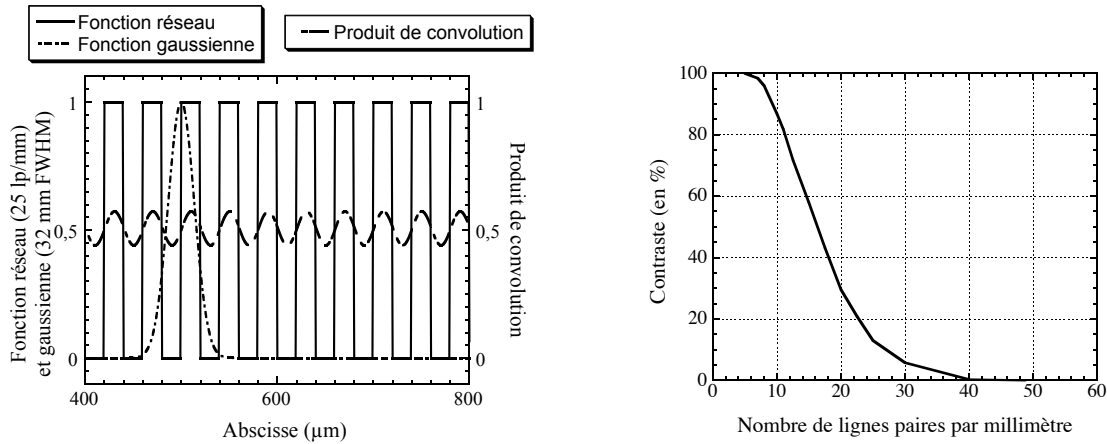
convoluer notre résolution assimilée à une gaussienne avec un réseau, typiquement de 25 lp/mm (*paires de lignes par millimètre*). La figure 3.10(a) nous montre les largeurs relatives d'un réseau normalisé de 25 lp/mm avec une gaussienne normalisée de 32  $\mu$ m de largeur à mi-hauteur, ainsi que le produit de convolution entre ces deux signaux. En figure 3.10(b) est présenté le contraste obtenu pour une convolution entre cette gaussienne de largeur à mi-hauteur de 32  $\mu$ m, et un réseau dont la fréquence spatiale est indiquée en abscisse.

On peut trouver des performances exprimées en lp/mm obtenues par différents groupes :

- P. Gallant obtenait un contraste de  $\sim 75$  % avec un réseau de 25 lp/mm, ce qui justifiait une "résolution" d'au moins 30-40  $\mu$ m [Gallant 98][Gallant 01],
- P. Jaanimagi obtenait un contraste de 25 % avec un réseau de 10 lp/mm, ce qui correspond dans ce cas à 5 lp/mm pour un contraste de 50 % [Jaanimagi *et al.* 88],
- R.A. Lerche obtenait 40  $\mu$ m de résolution spatiale avec un contraste de 60% pour un réseau de 10 lp/mm [Lerche *et al.* 04].
- enfin, la société Hamamatsu avance une résolution spatiale de 18 lp/mm pour des modèles commerciaux<sup>1</sup>,

Dans notre cas, obtenir un contraste de 50 % reviendrait à imposer une fréquence spatiale de 16 lp/mm au plus, ou bien encore un contraste de 80 % reviendrait à imposer une fréquence spatiale de 11 lp/mm au plus, valeurs proches de celles publiées. Cependant, il n'est pas possible de comparer avec rigueur les différents résultats présentés, puisque

<sup>1</sup><http://usa.hamamatsu.com/en/products/system-division/ultra-fast/streak-systems>



(a) *Échelle de gauche* : Représentation d'un "peigne" de 25 lp/mm et d'une gaussienne de largeur à mi-hauteur de 32 μm (normalisés). *Échelle de droite* : Résultat du produit de convolution entre ces deux fonctions (normalisé).

(b) Contraste en fonction du nombre de lignes paires par mm (pour un produit de convolution avec une gaussienne de 32 μm FWHM).

**Fig. 3.10:** *Contraste obtenu par convolution entre un réseau de lignes et une gaussienne de 32 μm de largeur à mi-hauteur.*

la résolution n'est pas toujours explicitement définie par les auteurs. Il faut aussi retenir que la résolution spatiale est souvent déduite de mesures en mode statique alors qu'elle est légèrement dégradée en mode balayé.

### 3.2.2.2 Axe temporel

**Focalisation de la trace le long de l'axe temporel** La fonction d'étalement de ligne (FEL ou LSF pour "*Line Spread Function*") est la largeur du signal en sortie de la caméra CBF selon l'axe  $y$  (axe temporel) tel que mesuré en mode statique (sans balayage). Elle contribue à la limitation de la résolution temporelle en mode balayé. Sans tension appliquée sur les plaques de déflexion, nous mesurons pour la fonction d'étalement de ligne la valeur :  $37 \pm 6$  μm FWHM. Cette valeur ne dépend ni de la distance  $d$  entre la photocathode et la fente accélératrice, ni de la tension d'extraction  $V_{PK}$ .

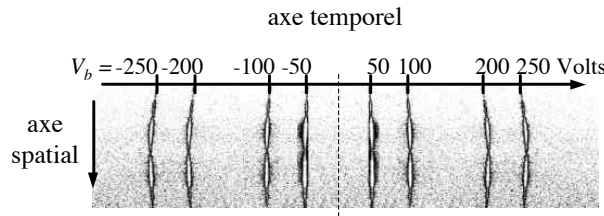
Nous avons observé que la résolution spatiale (*i.e.* en quelque sorte, la capacité à refocaliser un signal le long de l'axe spatial) était dégradée en mode balayé. Il n'est pas possible de mesurer un tel effet sur la FEL puisqu'en mode balayé, la largeur de la trace est dominée par toutes les autres contributions à la résolution temporelle de l'instrument. Cependant, nous pouvons faire une analogie avec le résultat obtenu pour la mesure de la résolution spatiale (Cf. section 3.2.2.1 ci-dessus).

La résolution spatiale mesurée sans rampe de tension sur les plaques de déflexion est de

32  $\mu\text{m}$ , et passe à 49  $\mu\text{m}$  lorsque les plaques de déflexion sont mises sous tension. On peut considérer que la rampe de tension sur les plaques de déflexion induit une dispersion de 37  $\mu\text{m}$ , qui, convolué aux 32  $\mu\text{m}$  mesurés, donne 49  $\mu\text{m}$ . Aussi, en convoluant de manière similaire cet effet à la mesure de la fonction d'étalement de ligne, nous obtenons au final la valeur suivante :  $\text{FEL} = 52 \pm 7 \mu\text{m}$  en mode balayé.

### 3.2.2.3 Courbure statique de la trace

Le signal obtenu en sortie de la caméra à balayage de fente n'est pas rectiligne. On peut voir en figure 3.11 des traces obtenues en différentes zones du phosphore, en appliquant des tensions statiques  $V_b$  différentes sur les plaques de déflexion. Cette tension a pour effet de déplacer la trace le long de l'axe temporel. Au centre de l'image ( $V_b = 0 \text{ V}$ ), la trace est rectiligne. La courbure est d'autant plus accentuée que l'on s'éloigne du centre de la caméra.



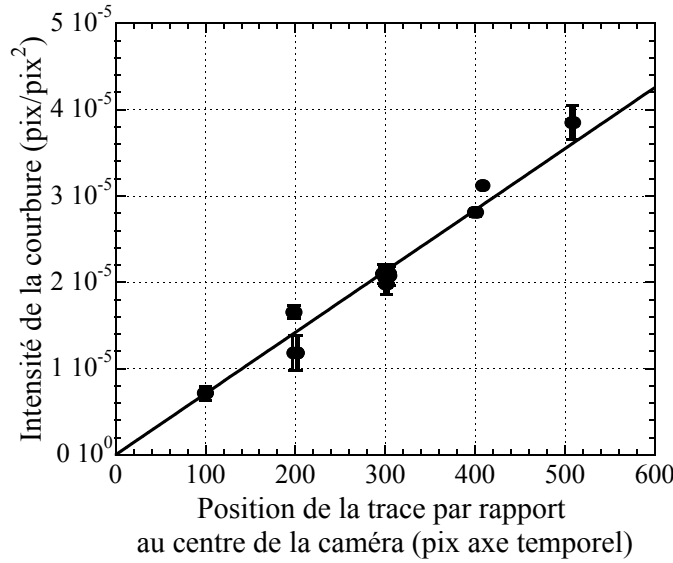
**Fig. 3.11:** Différentes traces sont représentées sur ce même schéma, chacune étant obtenue avec une tension  $V_b$  différente (de 50 à 250 V en absolu). Au centre en trait pointillé est représenté l'axe de symétrie de la caméra à balayage de fente. La hauteur a été divisée par 4 afin d'accentuer l'effet visuel de la courbure des traces.

Chaque trace est ajustée par un polynôme du second degré, et le coefficient du terme d'ordre deux correspond à l'intensité de la courbure. L'intensité de la courbure de la trace est exprimée en  $\text{pix}/\text{pix}^2$ . Elle est représentée en figure 3.12 en fonction de l'écart au centre de la caméra, exprimé en pixel (un pixel de la caméra CCD correspond à 20  $\mu\text{m}$ ). L'évolution est linéaire, et nous avons la relation :  $\text{Intensité de courbure}(\text{pix}/\text{pix}^2) = (7,1 \pm 0,1) \cdot 10^{-8} \times \text{Position}(\text{pix})$ . L'étude a été étendue à différentes valeurs de la tension d'extraction  $V_{PK}$  et de la distance  $d$ . Nous n'avons pas observé de modification de cette courbure statique qui semble liée aux propriétés de l'imagerie du tube en lui-même.

### 3.2.2.4 Homogénéité

Nous présentons ici la caractérisation de l'homogénéité de la réponse de l'instrument, selon les axes spatial et temporel.

**Homogénéité selon l'axe spatial** Le signal choisi pour irradier notre instrument n'a pas été le signal  $3\omega$  triplé en fréquence, car celui-ci n'était pas homogène spatialement.



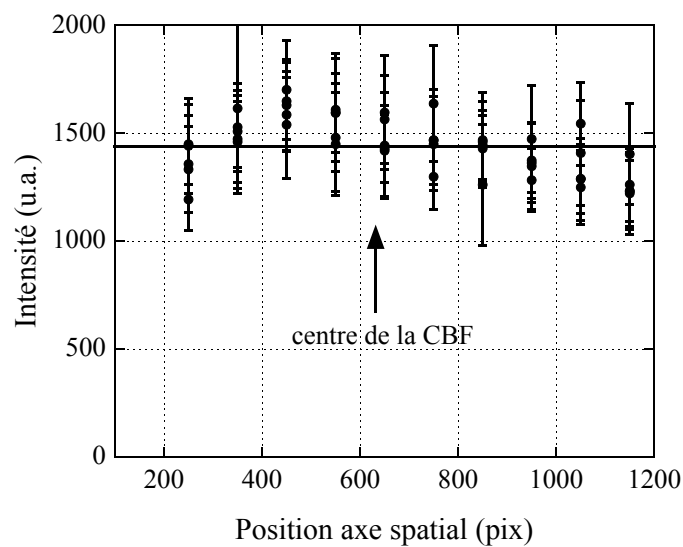
**Fig. 3.12:** *Intensité de la courbure de la trace en fonction de la position de la trace sur l'écran de phosphore. Les positions de la trace sont représentées en valeur absolue, réunissant les traces situées de part et d'autre de l'axe de symétrie de la CBF.*

Nous avons caractérisé l'homogénéité de la réponse de la caméra à balayage de fente avec le rayonnement X isotrope issu des agrégats. La source de rayonnement étant ponctuelle, une distance suffisante a été choisie entre la source X et l'entrée de la caméra de façon à nous assurer que le signal était homogène le long de la photocathode.

Le signal mesuré le long de l'axe spatial est présenté en figure 3.13. On voit que les fluctuations du signal sont importantes : elles sont de l'ordre de  $\pm 10\%$ . Il n'y a pas de structure globale sur la variation de l'intensité du signal (signal "plat"). Les fluctuations observées incluent également les fluctuations du signal mesuré, importantes puisque le signal X incident était relativement faible. L'homogénéité est donc meilleure que ces 10 % de fluctuation.

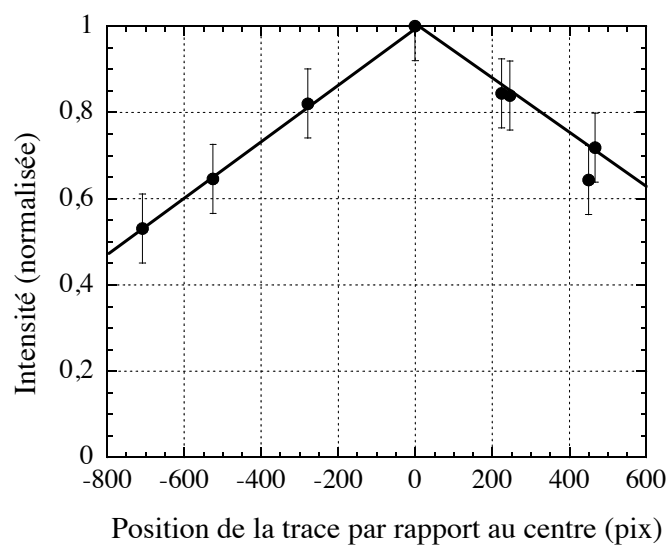
Cela étant dit, cette homogénéité spatiale est directement liée à l'homogénéité de la photocathode. Celle-ci étant fragile et très sensible à l'environnement (humidité notamment), il est fort indiqué de contrôler cette homogénéité pendant les expériences. Pour les expériences de spectroscopie X résolue en temps, ceci se fait par la mesure parallèle de l'émission X par le spectromètre intégré en temps.

**Homogénéité selon l'axe temporel** Pour obtenir un meilleur rapport signal sur bruit, l'homogénéité selon l'axe temporel a été étudiée de nouveau avec le faisceau  $3\omega$  plus intense et très stable en intensité. La figure 3.14 représente l'intensité du signal mesuré pour différentes positions de la trace le long de l'axe temporel (ajustées avec la tension statique  $V_b$  sur les plaques de déflexion). Les barres d'erreur intègrent la fluctuation du signal  $3\omega$  entre les différentes mesures. L'intensité mesurée diminue linéairement selon l'écart à la



**Fig. 3.13:** *Variation de l'intensité du signal le long de l'axe spatial.*

position centrale de la caméra : la perte d'intensité du signal peut atteindre jusqu'à 50 % sur les extrémités de l'image CCD.

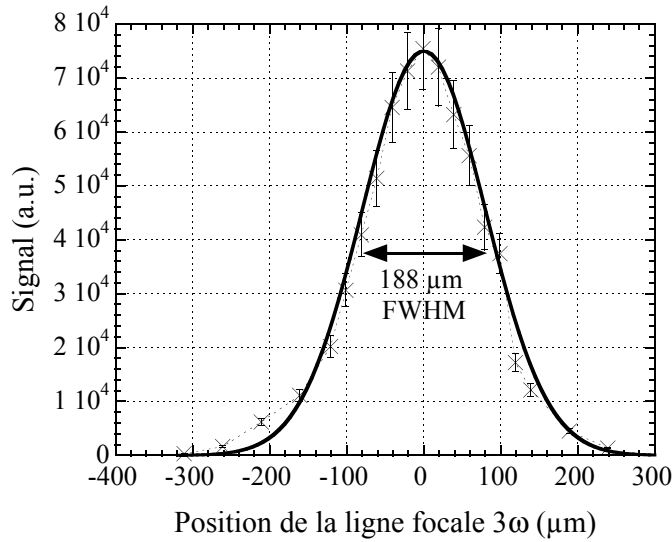


**Fig. 3.14:** *Variation de l'intensité du signal mesuré le long de l'axe temporel en sortie de la caméra à balayage de fente.*



### 3.2.2.5 Surface de collection

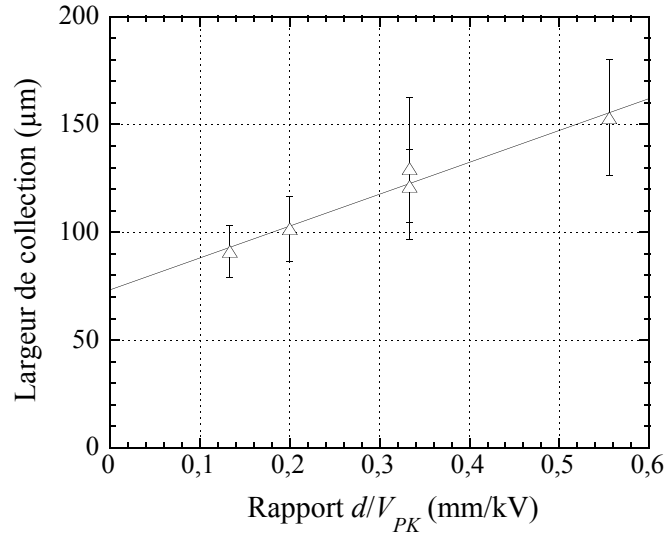
Afin de déterminer la surface de collection de la caméra CBF, nous avons utilisé le montage décrit en figure 3.6, et l'axe de focalisation de la lentille plano-cylindrique était cette fois parallèle à la photocathode (*i.e.* à la fente d'extraction). Nous avons effectué un décalage de la ligne focale du faisceau  $3\omega$  selon l'axe  $y$  (hauteur, perpendiculaire à la photocathode) à l'aide d'une platine de translation. L'intensité du signal mesuré sur la CCD est reportée sur la figure 3.15, en fonction de ce décalage. La tension sur la photocathode est de 9 kV et la distance  $d$  entre la photocathode et la fente d'extraction est de 5 mm. Les points sont assez bien reproduits par une fonction gaussienne de largeur à mi-hauteur  $188 \pm 15 \mu\text{m}$ . Cette figure démontre que le signal incident n'est détecté que s'il illumine une surface de la photocathode de largeur limitée. Ce phénomène est lié à l'impact de la fente d'extraction sur l'imagerie du tube. Il est traité en terme de "fente virtuelle" imagée sur le plan de la photocathode [Jaanimagi *et al.* 95]. *A priori*, l'utilisation d'une fente d'extraction plus fine devrait réduire la FEL (Cf. section 3.2.2.2) au prix de la réduction de la largeur de cette fente virtuelle (*i.e.* de la surface de collection).



**Fig. 3.15:** Intensité du signal mesuré sur la CCD en fonction de la position de la ligne focale du faisceau  $3\omega$  perpendiculairement à l'axe de la fente d'extraction. La configuration expérimentale est de 9 kV pour  $V_{PK}$  et 5 mm pour  $d$ . Une courbe d'ajustement de profil gaussien indique une largeur à mi-hauteur de  $188 \mu\text{m}$  pour la configuration présentée.

Nous avons réalisé une étude exhaustive de cette surface de collection en fonction des paramètres  $d$  et  $V_{PK}$ . Nous présentons en figure 3.16 la variation de la largeur de la surface de collection en fonction de l'inverse du champ d'extraction. Le comportement est bien rendu par la relation suivante :  $\text{Largeur de collection}_{\text{FWHM}}(\mu\text{m}) = (148 \pm 15) \times d(\text{mm})/V_{PK}(\text{kV}) + (73 \pm 8)$ .

Dans la configuration d'utilisation ( $V_{PK} = 15$  kV et  $d = 2$  mm) on retrouve cette forme gaussienne, et la largeur de collection est de  $93 \pm 10$   $\mu\text{m}$  à mi-hauteur.



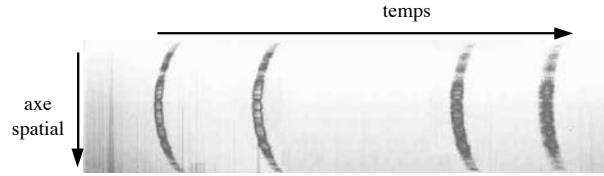
**Fig. 3.16:** Variation de la largeur de la surface de collection (FWHM) en fonction de l'inverse du champ d'extraction (en kV/mm).

### 3.2.3 Caractéristiques temporelles du tube

#### 3.2.3.1 Courbure dynamique de la trace

Lorsque nous appliquons les rampes de tension sur les plaques de déflexion, nous résolvons temporellement le signal observé. Les électrons dans la caméra à balayage ayant des longueurs de trajet différentes n'arriveront pas au même instant au niveau du plan constitué par le phosphore en sortie de la caméra à balayage de fente. Cela induit une dispersion temporelle qui n'est pas liée aux caractéristiques temporelles du signal, et qu'il faut donc corriger. La figure 3.17 présente des images obtenues à différentes positions le long de l'axe temporel sur l'écran en sortie de caméra. Ces positions ont été ajustées en jouant sur le délai entre le signal  $3\omega$  incident sur la photocathode et le signal  $\omega$  de déclenche des commutateurs optiques. On voit que les courbures sont de moins en moins importantes pour des positions correspondant à des temps croissants. En ajustant ces courbes par des polynômes du second degré, nous désignerons par la suite "l'intensité de courbure" le coefficient du terme d'ordre deux, exprimé en  $\text{pix}/\text{pix}^2$ .

Les intensités de courbure sont estimées par des ajustements par des polynômes d'ordre 2 (Cf. Fig. 3.18(a)). La figure 3.18(b) présente l'évolution des différentes intensités de courbure en fonction de la position de la trace le long de l'axe temporel, pour  $V_{PK} =$

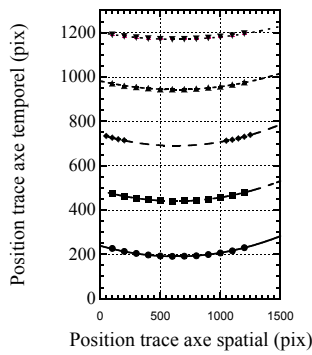


**Fig. 3.17:** Traces obtenues pour différents délais de déclenche des rampes de tension de déflexion. La hauteur a été divisée par 4 afin d'accentuer l'effet visuel de la courbure.

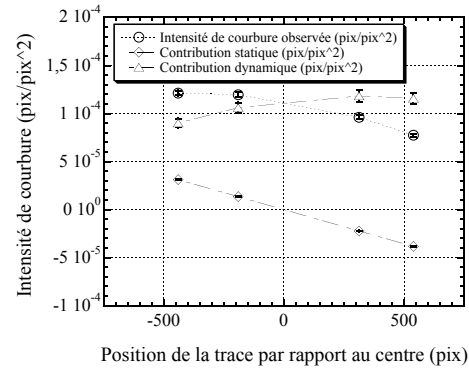
15 kV et  $V_{tot} = 2$  kV. Une fois la contribution statique soustraite (liée à l'imagerie du tube en statique - Cf. section 3.2.2.3), on observe que la contribution dynamique est essentiellement indépendante de la position le long de l'axe temporel. C'est le signe d'une vitesse de balayage constante sur toute la gamme observée.

Cette étude a été étendue à d'autres valeurs de tension d'extraction  $V_{PK}$  et de tension de balayage  $V_{tot}$  ( $V_{tot}$  = amplitude de la rampe de tension appliquée aux plaques de déflexion). De l'ensemble de ces mesures, nous avons observé la relation suivante pour la contribution dynamique à l'intensité de courbure de la trace :

$$\text{Intensité de courbure dynamique (pix/pix}^2\text{)} = (8,7 \pm 0,2) \cdot 10^{-2} \times V_{tot}(\text{V}) / V_{PK}^{3/2}(\text{V}).$$



**(a)** Détermination de l'intensité de courbure des différentes traces. Les symboles (ronds, carrés, etc.) correspondent aux mesures. Les traits correspondent à des ajustements par des polynômes d'ordre deux.

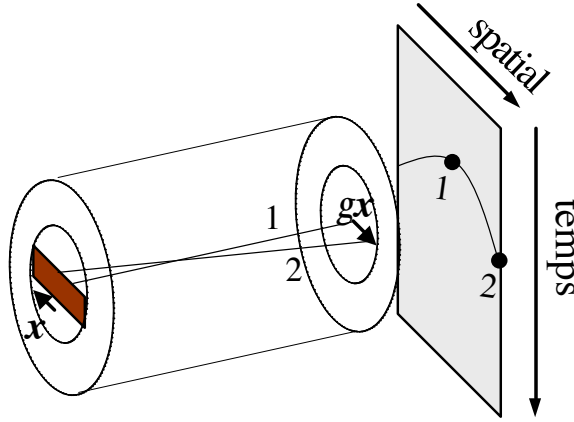


**(b)** Intensité de courbure en fonction de la position de la trace le long de l'axe temporel.

**Fig. 3.18:** Caractérisation de l'intensité de courbure en mode "balayé" de la caméra. La tension d'extraction est  $V_{PK} = 15$  kV et la tension de balayage  $V_{tot}$  est de 2 kV.

On peut évaluer *a priori* cette courbure, en considérant qu'en première approximation les trajectoires des électrons sont rectilignes dans le tube de la CBF. Deux trajets sont présentés en figure 3.19. Le trajet 1 (sur l'axe) correspond au trajet le plus court dans le corps de la caméra à balayage de fente. La longueur suivie est notée  $D$ . Le trajet 2

correspond au chemin suivi par un électron émis à une distance notée  $x$  de l'axe au niveau de la photocathode. La longueur de ce chemin est notée  $D(x)$ . L'écart entre les deux électrons au niveau du phosphore en sortie de la caméra à balayage de fente est  $\gamma x$ , avec  $\gamma$  le grandissement selon l'axe spatial de la caméra (Cf. section 3.2.2.1).



**Fig. 3.19:** Présentation schématique de deux trajets différents suivis par les électrons dans le corps de la caméra à balayage de fente. L'électron ayant suivi le trajet le plus long (chemin 2) arrive en retard, et est dévié différemment de l'autre électron.

La distance en fonction de l'écart transverse vaut :  $D(x) = D \cdot \sqrt{1 + \frac{(1+\gamma)^2 x^2}{D^2}} \simeq D \cdot (1 + \frac{1}{2} \frac{(1+\gamma)^2 x^2}{D^2})$ . La vitesse  $v_e$  des électrons (non-relativistes) vaut :  $v_e = \sqrt{\frac{2 \cdot q_e \cdot V_{PK}}{m_e}}$ , où  $(-q_e)$  et  $m_e$  désignent la charge et la masse d'un électron. Aussi, le temps d'arrivée vaut :  $t(x) = \frac{D}{v_e} + \frac{(1+\gamma)^2 x^2}{2D} \frac{1}{v_e}$ . Le déplacement induit selon l'axe temporel en sortie de l'instrument vaut :  $\Delta Y(x) = \frac{(1+\gamma)^2 x^2}{2D v_e} \times v_b$ .  $v_b$  désigne la vitesse de balayage, on la désigne plus souvent par  $v_b^{-1}$ . Elle dépend de  $V_{PK}$  et de  $V_{tot}$  par la relation  $v_b^{-1} = \alpha \cdot \frac{V_{PK}}{V_{tot}^{3/2}}$ , (avec  $\alpha = 1,7 \cdot 10^{-9}$  s.m<sup>-1</sup>, Cf. section 3.2.3.2). On obtient finalement l'équation d'une parabole pour la trace au niveau de l'écran de phosphore :

$$\Delta Y(X) = \left( \frac{1+\gamma}{\gamma} \right)^2 \frac{1}{2\alpha} \sqrt{\frac{m_e}{2q_e}} \frac{V_{tot}}{D \cdot V_{PK}^{3/2}} \cdot X^2 \quad (3.2)$$

où  $X = \gamma x$  et  $D \sim 26 \pm 1$  cm.

En estimant 20  $\mu$ m par pixel sur la CCD, nous estimons ainsi la courbure induite par le balayage à  $(9,1 \pm 0,8) \cdot 10^{-2} V_{tot}(V)/V_{PK}^{3/2}(V)$  pix/pix<sup>2</sup>, ce qui est en très bon accord avec nos mesures. Cependant, les trajets suivis par les électrons ne sont pas rectilignes comme indiqués sur la figure 3.19, et une estimation plus rigoureuse ne peut se passer d'une simulation rendant compte des trajectoires plus complexes suivies par les électrons.

### 3.2.3.2 Résolution temporelle

La résolution temporelle  $\Delta t$  de l'instrument dépend *a priori* de multiples facteurs. En les considérant indépendants les uns des autres, on peut les convoluer [Stradling *et al.* 86] de la manière suivante :

$$\Delta t^2 = \Delta t_{FEL}^2 + \Delta t_{PK}^2 + \Delta t_{ce}^2 + \Delta t_{gigue}^2 \quad (3.3)$$

avec :

$\Delta t_{FEL}$  la contribution due à la focalisation imparfaite sur l'axe temporel (FEL - Cf. section 3.2.2.2),

$\Delta t_{PK}$  la contribution due à la dispersion énergétique initiale des électrons à la surface de la photocathode,

$\Delta t_{ce}$  la contribution due aux effets de charge d'espace,

$\Delta t_{gigue}$  la contribution due à la gigue temporelle, qui est la variation tir à tir de la position de la trace.

Les trois premières contributions sont liées à la CBF même (*i.e.* la résolution temporelle en mode monocoup). La dernière n'existe qu'en mode récurrent et ne dépend que de la maîtrise du système de rampes de tension. Nous allons voir que c'est cette dernière qui domine et limite la résolution temporelle en mode récurrent.

Une autre contribution (mineure en ce qui nous concerne) est liée à la résolution de la CCD lorsque la taille d'un pixel n'est pas négligeable [Hara *et al.* 00].

**Contribution de la Fonction d'Étalement de Ligne** La focalisation imparfaite sur l'axe temporel contribue à la largeur du signal mesuré, et cette contribution peut-être exprimée selon [Stradling *et al.* 86] :

$$\Delta t_{FEL} = v_b^{-1} \cdot FEL \quad (3.4)$$

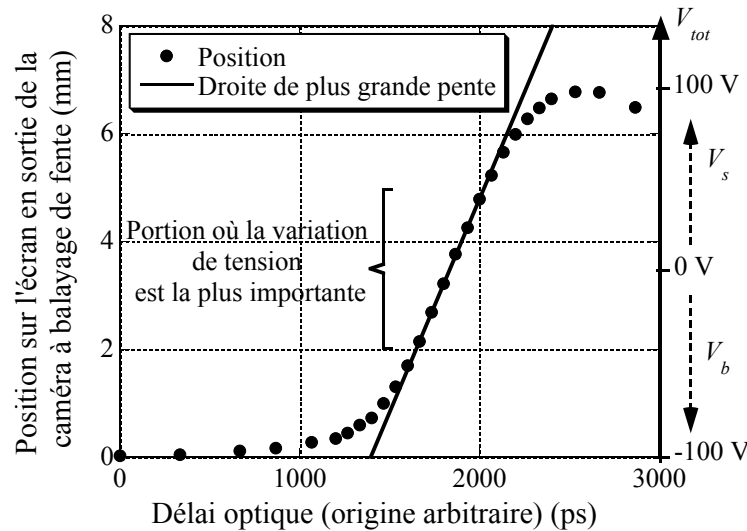
avec FEL la fonction d'étalement de ligne ("*Line Spread Function*") et  $v_b$  la vitesse de balayage.

Nous rappelons la valeur de la fonction d'étalement de ligne et présentons la vitesse de balayage aux paragraphes suivants.

**Focalisation selon l'axe temporel** La fonction d'étalement de ligne a déjà été présentée à la section 3.2.2.2, et nous rappellerons ici seulement la valeur obtenue :  $FEL = 52 \pm 7 \mu m$  (en tenant compte de l'effet perturbateur des rampes de tension en mode balayé).

**Vitesse de balayage** La vitesse de balayage  $v_b$  permet de convertir, en sortie de l'instrument, un déplacement le long de l'axe temporel, en temps. Autrement dit, elle est le lien entre la longueur du signal sur le phosphore en sortie de l'instrument, et la durée du signal en entrée de l'instrument. On emploie usuellement son inverse,  $v_b^{-1}$ , qui est exprimé en ps/mm. Afin de mesurer la vitesse de balayage, nous pouvons fixer les tensions de balayage, et faire varier le délai optique réalisant la déclenche des commutateurs optiques commandant la rampe de tension (Cf. Fig. 3.5). En mesurant la position en sortie de la caméra pour plusieurs délais différents, nous obtenons le comportement temporel des rampes de tension. Une telle mesure est présentée à la figure 3.20. Sur cette figure, la tension de déflexion est indiquée selon l'ordonnée à droite : elle varie de  $V_b = -100$  V à  $V_s = 100$  V. Ces valeurs sont volontairement faibles de façon à pouvoir observer toute la rampe de tension sur la CCD. Après avoir obtenu l'allure de la tension appliquée aux plaques de déflexion en fonction du temps, il faut positionner le délai permettant d'être sur la rampe de tension, là où la variation du champ en fonction du temps est maximale.

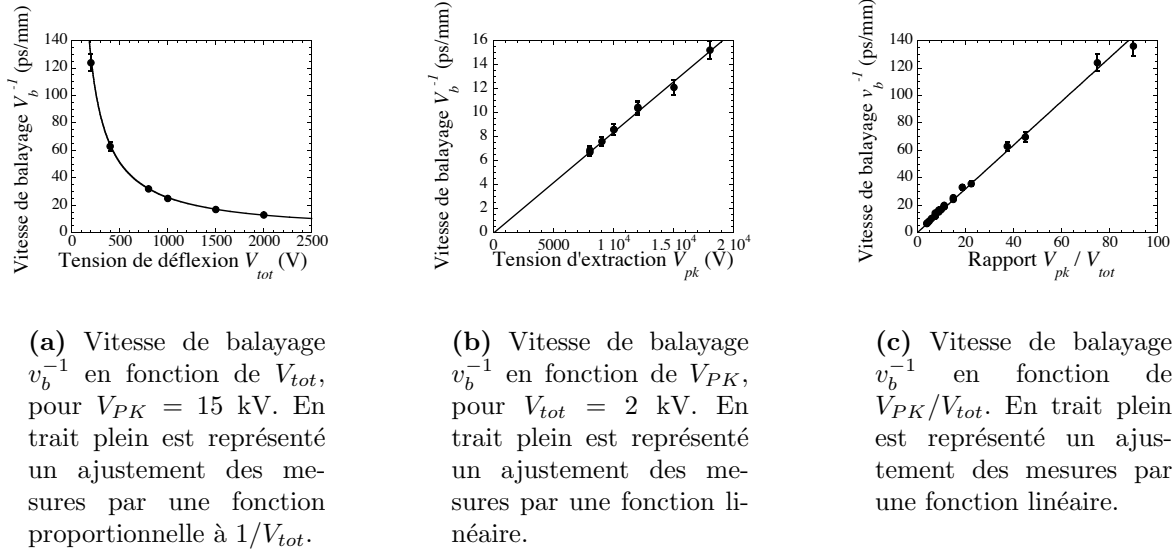
Dans cette plage temporelle, la position de la trace varie quasi-linéairement avec le délai entre le signal incident sur la photocathode et le signal de déclenche des rampes de tension. La vitesse de balayage est déduite de la pente observée. Dans le cas de la figure 3.20, on obtient  $v_b^{-1} = 125 \pm 2$  ps/mm.



**Fig. 3.20:** Évolution en temps de la position de la trace en sortie de la caméra à balayage de fente. Pour une tension d'extraction donnée ( $V_{PK} = 15$  kV), cette variation reflète la variation de tension appliquée sur les plaques de déflexion. Ici, les tensions appliquées sont  $V_s = 100$  V et  $V_b = -100$  V. La vitesse de balayage est ici de  $125 \pm 2$  ps/mm.

La figure 3.21(a) représente la variation de la vitesse de balayage en fonction de la tension appliquée  $V_{tot}$  sur l'électrode d'extraction ( $V_{tot} = |V_s| + |V_b|$ ). Nous obtenons que la vitesse de balayage  $v_b^{-1}$  est inversement proportionnelle à la variation totale  $V_{tot}$  de tension appliquée sur les rampes de tensions. La figure 3.21(b) représente la variation de

la vitesse de balayage en fonction de la tension appliquée  $V_{PK}$  sur les plaques de déflexion. Nous voyons à partir de ce graphique que la vitesse de balayage est directement proportionnelle à la tension appliquée sur la photocathode  $V_{PK}$ . Aussi, nous pouvons regrouper les différentes mesures réalisées pour observer en figure 3.21(c) la proportionnalité entre la vitesse de balayage et le rapport des tensions  $V_{PK}/V_{tot}$ .



**Fig. 3.21:** Vitesse de balayage  $v_b^{-1}$  en fonction de  $V_{PK}$ ,  $V_{tot}$  et  $V_{PK}/V_{tot}$ .

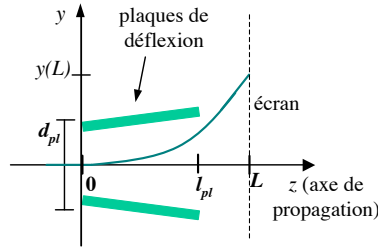
De toutes les expériences réalisées, nous pouvons établir pour la vitesse de balayage la relation suivante :  $v_b^{-1}(\text{ps/mm}) = (1,7 \pm 0,1) \times V_{PK}/V_{tot}$ .

La contribution de la fonction d'étalement de ligne à la résolution temporelle pour nos conditions usuelles d'utilisation ( $V_{PK} = 15$  kV et  $V_{tot} = 2$  kV) vaut :

$$\Delta t_{FEL} \simeq 600 \pm 130 \text{ fs}$$

On peut retrouver la vitesse de balayage comme suit. Les notations sont présentées sur la figure 3.22, où  $d_{pl}$  est la distance moyenne entre les plaques de déflexion,  $l_{pl}$  est la longueur des plaques de déflexion,  $L$  est la distance entre l'entrée des plaques de déflexion et l'écran de phosphore, avec  $z$  et  $y$  les positions respectives selon l'axe de propagation et l'axe temporel.

La vitesse  $v_e = \sqrt{2q_e V_{PK}/m_e}$  selon l'axe de propagation est la vitesse des électrons dans le tube (Cf. section 3.2.3.1). On applique l'équation du mouvement à un électron subissant un champ défecteur sur  $l_{pl}$  puis en vol libre entre  $l_{pl}$  et  $L$ . Si on définit un temps  $t_{rampe}$  correspondant au temps pour lequel la tension appliquée sur les plaques de déflexion a varié de la quantité  $V_{tot}$  (typiquement 1 ns pour une variation de 2 kV), nous obtenons



**Fig. 3.22:** Schéma représentant la courbure de la trajectoire suivie par un électron lors du passage entre les plaques de déflexion, et notations utilisées.

finalement :

$$v_b^{-1} = \frac{t_{rampe} \cdot 2 \cdot d_{pl}}{l_{pl} \cdot (L - l_{pl}/2)} \cdot \frac{V_{PK}}{V_{tot}} \quad (3.5)$$

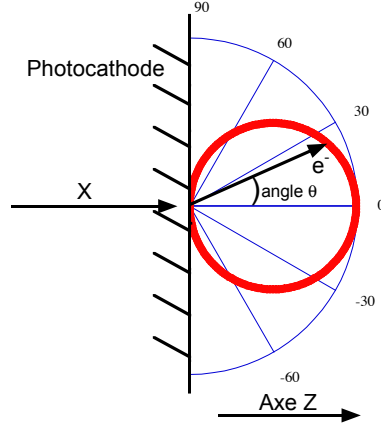
On retrouve la loi observée, proportionnelle à  $V_{PK}/V_{tot}$ . Les autres paramètres sont essentiellement de nature géométrique et sont figés par la nature de la CBF. On voit que la vitesse de balayage dépend aussi de  $t_{rampe}$ , le temps nécessaire pour faire varier la tension sur les plaques de déflexion. Lié à l'impédance des plaques de déflexion, il constitue une autre limite à l'amélioration de la vitesse de balayage.

**Contribution de la dispersion des électrons émis par la photocathode** Les photons incidents sur la caméra à balayage de fente sont convertis en électrons primaires, puis en électrons secondaires au niveau de la photocathode. Ces derniers électrons sont imagés par le tube sur l'écran de phosphore et contribuent à la trace observée. Ils ont une double distribution : angulaire, et énergétique. Ces deux effets sont présentés succinctement avant de présenter le bilan de leur contribution à la résolution temporelle.

**distribution angulaire** En supposant une émission des électrons secondaires isotrope en tout point à l'intérieur de la photocathode, nous obtenons une distribution angulaire dite Lambertienne : le nombre d'électrons émis dans la direction  $\theta$  est proportionnel à  $\cos \theta$  (cf. figure 3.23). La probabilité d'émission des électrons sera maximale selon la perpendiculaire à la surface de la photocathode. Pourtant, les électrons ayant une vitesse transverse sont les plus nombreux : il reste à les quantifier. Nous pouvons de manière qualitative remarquer que l'épaisseur de la fente accélératrice pourra sélectionner plus ou moins ces électrons, ainsi que l'intensité du champ électrique d'extraction (ils arrivent au niveau de la fente accélératrice avec une vitesse selon l'axe de propagation proportionnelle à  $V_{PK}^{1/2}$ ).

**distribution énergétique** Nous pouvons, en suivant Jaanimagi [Jaanimagi *et al.* 95], nous intéresser à la contribution de la distribution en énergie des photo-électrons à la résolution temporelle. L'idée générale est que des électrons d'énergies initiales différentes





**Fig. 3.23:** Schéma représentant la distribution angulaire de la probabilité d'émission des électrons depuis la surface de la photocathode.

en sortie de la photocathode vont être dispersés temporellement entre la photocathode et la fente accélératrice d'une part (zone d'extraction), et entre la fente et l'écran de phosphore d'autre part (zone de "vol libre"). La dispersion temporelle totale est dominée par la contribution de la zone d'extraction.

La distribution en énergie initiale des électrons émis, pour le domaine des photons incidents allant de 100 eV à 10 keV, peut être exprimée selon [Henke *et al.* 79] [Chang *et al.* 96] :

$$N(eV_0) \propto \frac{eV_0}{(eV_0 + W)^4}$$

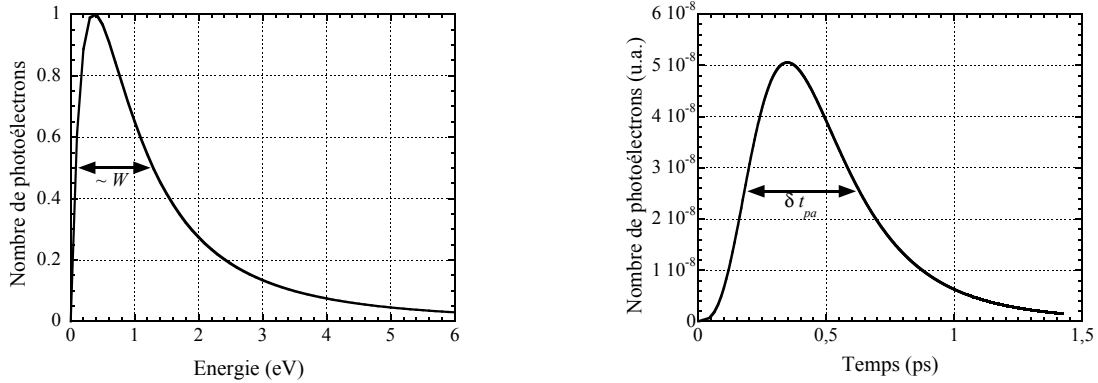
avec  $W$  une valeur dépendant du matériau de la photocathode ( $W$  toujours de l'ordre de l'eV, avec  $W = 1$  eV pour une photocathode de KBr [Chang *et al.* 96],  $W = 0,61$  eV pour une photocathode de KI, et  $W \sim 3$  eV pour une photocathode mixte de Au-CsI [Chakera *et al.* 01]). Nous présentons le profil de la distribution énergétique ainsi que la dispersion temporelle des électrons déduite au niveau de la fente d'accélération en figure 3.24(a).

On peut rendre compte de la largeur de la dispersion temporelle  $\delta t_{pa}$  induite entre la photocathode et la fente (anode) par la dispersion énergétique par la relation suivante [Boutry *et al.* 82] [Chang *et al.* 96] [Gallant *et al.* 00] :

$$\delta t_{pa}(\text{ps}) \propto \frac{\sqrt{W(\text{eV})}}{|\vec{E}|} \quad (3.6)$$

où la norme du champ électrique  $|\vec{E}|$  est exprimée en kV/mm.

À partir de la figure 3.24(b), on déduit  $\delta t_{pa} = (3,2 \pm 0,2) \sqrt{W}/|\vec{E}|$ . Pour  $W = 0,61$  eV,  $V_{PK} = 15$  kV et  $d = 2$  mm, on trouve  $\delta t_{pa} \sim 0,330 \pm 40$  ps.



(a) Distribution normalisée en énergies des électrons émis par la photocathode. La largeur à mi-hauteur est de  $1,1 \times W$ .

(b) Dispersion temporelle des électrons au niveau de la fente d'accélération (calcul pour  $W = 1,1$  eV,  $V_{PK} = 15$  kV et  $d = 2$  mm).

**Fig. 3.24:** Distributions énergétique et temporelle des électrons.

Pour la zone de "vol libre" entre la fente et l'écran de phosphore de sortie, on peut rendre compte de la dispersion temporelle supplémentaire  $\delta t_{ad}$  entre l'anode et la zone de déflexion par la relation :

$$\delta t_{ad} \approx \frac{1}{2} t_{ad} \frac{W(\text{eV})}{V_{PK}(\text{V})} \quad (3.7)$$

où  $t_{ad}$  est le temps de transit des électrons entre la fente et le phosphore. Pour  $V_{PK} = 15$  kV et  $W = 0,61$  eV, on trouve  $t_{ad} \sim 3,6$  ns et  $\delta t_{ad} \sim 70$  fs, quantité qui reste faible par rapport à la dispersion dans la zone comprise entre la photocathode et la fente.

**dispersion totale** En prenant en compte la dispersion énergétique seule, nous obtenons pour  $\Delta t_{PK} \sim 400$  fs en largeur à mi-hauteur pour  $V_{PK} = 15$  kV,  $d = 2$  mm et une photocathode en KI. On peut comparer ce résultat par celui obtenu par Chang *et al.* [Chang *et al.* 96], où l'élargissement temporel est de l'ordre de 275 fs FWHM pour un champ électrostatique de 10 kV/mm et une photocathode en KBr. Jaanimagi [Jaanimagi *et al.* 95] évalue numériquement l'effet due à la dispersion à la fois énergétique et angulaire à 600 fs FWHM pour une différence de potentiel de 15 kV appliquée sur 3 mm, avec une zone de vol libre de 25 cm. Pour notre part, nous évaluons l'effet total depuis l'ensemble des acquisitions réalisées à : 1,0 ps (voir en fin de section). La différence de potentiel est de 15 kV pour une distance de 2 mm entre la fente et la photocathode. La différence avec cette observation faite à  $3\omega$  s'explique en partie par le fait que la photocathode utilisée à  $3\omega$  était en palladium (valeur plus importante de  $W$ ).

**Contribution de l'effet de charge d'espace** Les électrons émis par la photocathode sont focalisés par un système de lentilles électro-statiques sur un phosphore en sortie de la caméra à balayage de fente. Lors du transport du paquet électronique, les électrons se repoussent mutuellement par effet coulombien (effet de charge d'espace). Cet effet a une composante longitudinale qui induit un élargissement temporel du paquet. Il sera quantifié en section 3.3.2 : nous avons pu déterminer un niveau de signal incident sur la photocathode pour lequel l'effet est négligeable pour la résolution temporelle totale et nous avons réalisé les expériences de calibration présentées ici en-deçà de ce seuil.

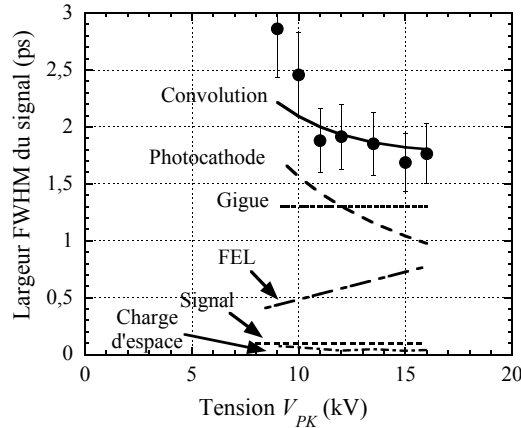
**Contribution de la gigue** La gigue temporelle étant la limite principale de la résolution temporelle du système de détection, elle a été l'attention d'une série d'expériences présentées en section 3.2.4. Cette gigue (ou "jitter") ne dépend que des impulsions laser de déclenche et des commutateurs optiques, mais en aucun cas de la CBF (et donc pas de la tension  $V_{PK}$ , ni de la distance  $d$ , etc.). Les résultats présentés ici ont été obtenus avec une gigue minimisée.

**Convolution des contributions** Les impulsions laser servant à caractériser la caméra à balayage de fente sont triplées en fréquence (signal  $3\omega$ ) afin de pouvoir être converties en électrons par la photocathode. La durée du signal ainsi modifié en longueur d'onde a été considérée par Liu *et al.* [Liu *et al.* 94] —avec des cristaux doubleur et tripleur identiques et des impulsions laser de même durée— et a été estimé comme étant inférieur à 100-200 fs. Aussi, la durée des impulsions laser est inférieure à la résolution temporelle totale de pratiquement un ordre de grandeur, et nous permet de déterminer les différentes contributions limitant la résolution.

Nous présentons en figure 3.25 les résultats expérimentaux de la mesure de la largeur temporelle de la trace, pour différentes valeurs de tensions d'extraction  $V_{PK}$  appliquées sur la photocathode. Toutes les contributions à la largeur de la trace sont indiquées. Les composantes liées à la gigue et la dispersion des électrons au niveau de la photocathode sont obtenues par un ajustement sur la courbe expérimentale. Au final, nous obtenons la résolution temporelle correspondant aux conditions d'utilisation de notre instrument ( $V_{PK} = 15$  kV et  $d = 2$  mm) :  $1,8 \pm 0,3$  ps FWHM, dont une contribution essentiellement due à la gigue qui est évaluée à  $1,3 \pm 0,2$  ps FWHM.

Ces mesures ont été effectuées sur des temps d'acquisition relativement court ( $\sim 1$  s, soit 1000 tirs au kHz). Pour des temps beaucoup plus longs, la gigue intégrée se dégrade un peu suite à des fluctuations lentement variables dans le temps, amenant la résolution temporelle à des valeurs plus proches de 2 à 3 ps FWHM pour des acquisitions sur 15 mn (Cf. section 3.2.4).

En mode monocoup, la résolution de notre détecteur serait de  $\sim 1,2 \pm 0,2$  ps avec la photocathode de Pd. En supposant les calculs de Jaanimagi corrects, avec la photocathode de KI utilisée pour les mesures dans le domaine des X, on obtiendrait une résolution monocoup de  $\sim 900 \pm 200$  fs.



**Fig. 3.25:** Largeur temporelle de la trace en fonction de la tension  $V_{PK}$  appliquée à la photocathode (pour une distance  $d = 2$  mm entre la photocathode de palladium et la fente d'extraction), et détail des différentes contributions.

### 3.2.4 Détection en mode récurrent

Afin de mettre à profit la haute cadence du système laser kHz à la gamme dynamique et au seuil de détection de nos mesures, notre système de détection est utilisé dans son mode de détection dit récurrent. Nous discutons ici de la principale limite à la résolution temporelle que ce système apporte, à savoir la gigue, de sa maîtrise et de l'optimisation pour minimiser son effet.

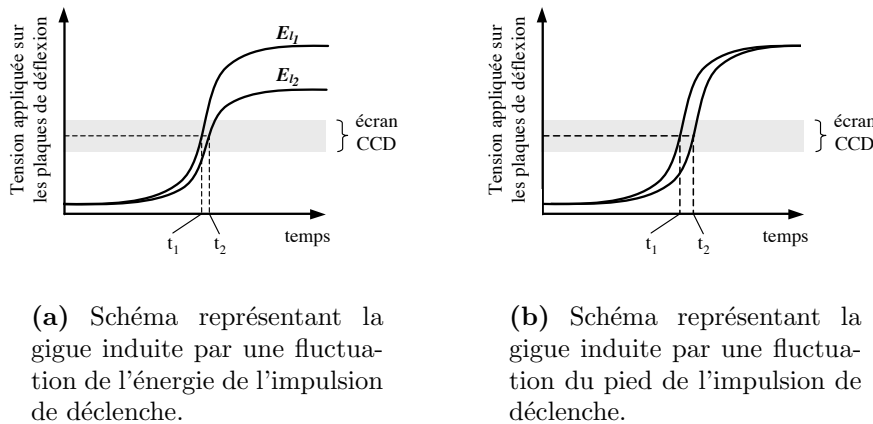
#### 3.2.4.1 Gigue temporelle

Nous avons vu aux paragraphes précédents (Cf. section 3.2.3.2) que la contribution essentielle à la limite de la résolution temporelle de notre instrument était imputable à l'effet de gigue temporelle. Notre système de déclenche optique est basé sur des photorésistances ("commutateurs optiques" ou "switch"). Il existe un lien entre l'énergie  $E_L$  contenue dans une impulsion laser illuminant ces commutateurs et la valeur de leur résistance  $R_s$ . Selon [Mourou *et al.* 79] :  $R_s = \alpha/E_L$ , où  $\alpha$  est la sensibilité du commutateur. C'est cet effet qui est utilisé pour déclencher les rampes de tension au moment où l'impulsion laser illumine le commutateur, il devient conducteur et la haute tension peut atteindre les plaques de déflexion. On comprend qu'une variation dans l'énergie laser induit un effet résistif différent, donc une rampe de tension différente, et une dispersion temporelle difficilement reproductible. De plus, l'énergie contenue par impulsion laser possède un profil temporel : l'avant de l'impulsion principale (sous forme de piédestal ou de pré-impulsions) peut contenir suffisamment d'énergie pour initier la déclenche du commutateur. Ces deux effets sont quantifiés au paragraphe suivant.

Nous présentons dans un premier temps la variation de la gigue temporelle en fonction de l'énergie contenue dans l'impulsion laser de déclenche. Puis nous proposerons dans un second temps la solution que nous avons mise en œuvre afin de minimiser la gigue.

### 3.2.4.2 Comportement selon l'énergie de l'impulsion de déclenche

L'influence de l'énergie des impulsions de déclenche sur la gigue temporelle a été étudiée en détail par Oksenhendler au Laboratoire d'Optique Appliquée en partenariat avec la société Fastlite [Oksenhendler 04]. Lorsque l'énergie de l'impulsion de déclenche est trop faible, le commutateur fonctionne en régime quasi-linéaire et reproduit les fluctuations de l'énergie laser sur la tension délivrée sur les plaques de déflexion (Cf. Fig. 3.26(a)). Si on augmente l'énergie de l'impulsion, le commutateur commence à saturer, ce qui minimise cet effet. À l'extrême, pour de grandes énergies, le pied de l'impulsion peut contribuer à "démarrer" prématurément la rampe de tension. Toutes les fluctuations de l'énergie contenue dans ces pieds sont reportées sur le temps de "départ" de la rampe (Cf. Fig. 3.26(b)). On comprend donc qu'un compromis est nécessaire. D'autre part, il faut aussi souligner que la meilleure gigue obtenue reste fonction de la stabilité en énergie du système laser utilisé, ce qui joue en faveur des installations de très haute cadence.

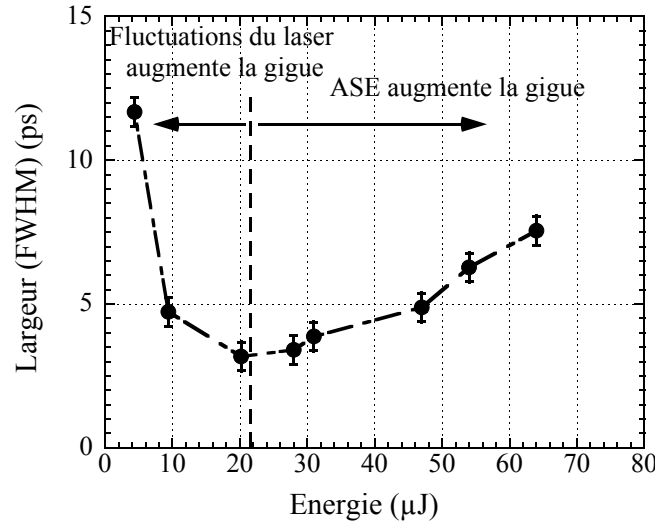


**Fig. 3.26:** Schémas représentant les contributions des fluctuations du pied et de l'énergie de l'impulsion de déclenche sur la gigue temporelle.

La figure 3.27 reporte des mesures de largeurs temporelles de traces obtenues en régime récurrent (une seconde par image, soit 1000 tirs laser) et sans aucune précaution, en fonction de l'énergie de l'impulsion laser de déclenche (ajustée au moyen d'une lame  $\lambda/2$  et d'un polariseur). On observe les deux effets mentionnés ci-dessus :

- à trop basse énergie, la gigue est très importante (commutateur non saturé),
- à trop haute énergie, la gigue augmente quasi- linéairement (effet du pied de l'impulsion de déclenche).

Le meilleur compromis correspond à environ 20  $\mu\text{J}$  sur les commutateurs. La gigue résiduelle conduit à une résolution temporelle de l'ordre de  $3,0 \pm 0,3$  ps dans l'étude présentée ici.



**Fig. 3.27:** *Largeur de trace (FWHM) (en pixels) en fonction de l'énergie de l'impulsion laser de déclenche sur les commutateurs optiques.*

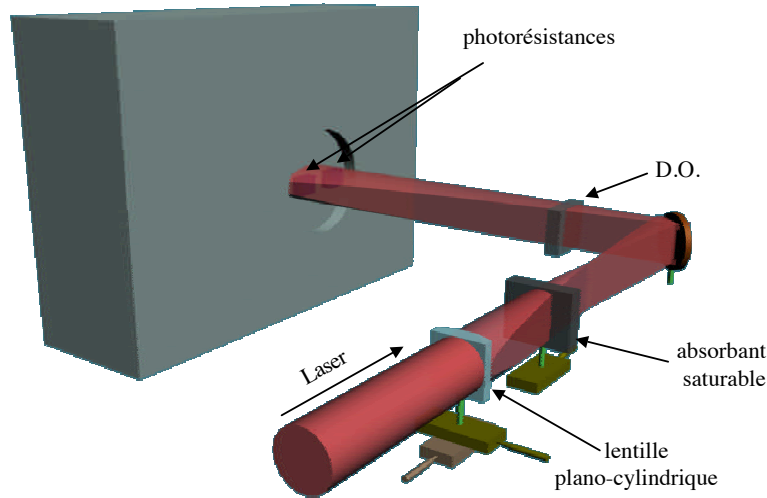
### 3.2.4.3 Optimisation

Afin de minimiser l'effet du pied de l'impulsion, nous pouvons essayer de diminuer son énergie tout en maintenant l'énergie dans l'impulsion. Pour cela, nous avons employé un absorbant saturable (en fait un filtre dénommé RG, pour "*Rhodamine Green*").

Le schéma présentant le montage expérimental est présenté en figure 3.28. L'emploi d'une lentille plano-cylindrique permet d'avoir un faisceau de profil elliptique, adapté à la géométrie des photo-résistances. Afin de contrôler la quantité d'énergie absorbée, nous avons placé l'absorbant saturable en une position optimale sur le parcours du faisceau, juste avant la ligne focale. Un jeu de densités optiques placées en aval est utilisé pour le contrôle de l'énergie totale irradiant les commutateurs.

Un réducteur, constitué de deux lentilles (convergente et divergente), a été testé afin d'obtenir une meilleure concentration de l'énergie laser sur les photorésistances, mais les fluctuations spatiales dans le faisceau étaient trop importantes, et semblaient être à l'origine d'une dégradation de la résolution temporelle du système de détection. Ce système a été ôté par la suite. Dans cet esprit, il paraît concluant d'employer un diffuseur pour rendre plus homogène l'irradiation des commutateurs [Servol 05].

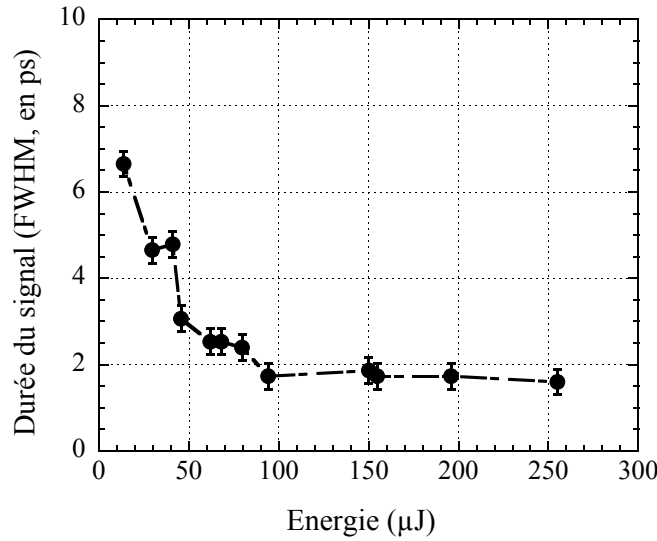
Nous avons réalisé une étude de la résolution temporelle de l'instrument en fonction de l'énergie contenue dans le faisceau irradiant les photorésistances avec ce montage (dont le filtre RG). Le résultat est présenté en figure 3.29. On observe toujours que la résolution commence par décroître en fonction de l'énergie employée (commutateur non saturé).



**Fig. 3.28:** Schéma du montage utilisé pour diminuer l'énergie de la pré-impulsion. Le faisceau laser arrive depuis le bas à gauche sur la figure. Il est focalisé au moyen d'une lentille plano-cylindrique. Puis l'absorbant saturable RG permet de diminuer l'énergie contenue dans la pré-impulsion. Enfin, l'énergie est contrôlée en disposant une densité optique appropriée.

En revanche, à plus haute énergie, on n'observe plus de remontée, ce qui semble être le signe d'une nette amélioration quant à l'effet du pied de l'impulsion. L'énergie minimale nécessaire pour minimiser la résolution temporelle du système de détection X est de l'ordre de 50  $\mu\text{J}$ .

La gigue résiduelle (déduite par déconvolution - Cf. section 3.2.3.2) est de  $1,3 \pm 0,2$  ps. Cette valeur tend à augmenter un peu sur des très grands temps d'accumulation des traces. Elle est de toute façon mesurée à chaque expérience à l'aide du faisceau  $3\omega$  sur les mêmes temps d'accumulation et avec le même dispositif expérimental que ceux des mesures X.



**Fig. 3.29:** *Largeur temporelle des traces accumulées en fonction de l'énergie laser appliquée sur les commutateurs. Les conditions expérimentales correspondent à un RG de 2 mm d'épaisseur disposé à 8,8 cm de la lentille plano-cylindrique (focale = 10 cm, et diamètre de faisceau  $\sim 1$  cm), en appliquant une tension  $V_b$  et  $V_s$  de  $-800$  et  $1200$  Volts respectivement, et pour 10 s d'accumulation au kHz.*

### 3.3 Gamme dynamique et seuils de détection

L'intérêt majeur du fonctionnement en mode récurrent est d'augmenter significativement la gamme dynamique de détection, qui n'est que d'environ 1 :10 en mode monocoup [Gallant 98]. Cette gamme dynamique est limitée d'une part vers le bas par le seuil de détection (qui s'abaisse en mode récurrent et ce d'autant plus que le nombre de tirs accumulés augmente) notamment lié au dispositif de détection en sortie de CBF : CCD ou amplificateur de luminescence et CCD. D'autre part, elle est limitée vers le haut par plusieurs mécanismes de saturation : la saturation de la photocathode, celle de la CCD en sortie de la CBF et l'effet de charge d'espace dans le tube qui domine et dégrade la résolution temporelle de la CBF.

#### 3.3.1 Saturation de la photocathode

Le système photocathode-fente d'extraction peut être assimilé à une diode. La densité de courant qui traverse une telle diode constituée par deux plans infinis séparés d'une distance  $d$  (en cm) et soumise à une différence de potentiel  $V$  (en V) ne peut dépasser une valeur  $J_{CL}$  définie par la loi de Child-Langmuir [Gontier *et al.* 99] :



$$J_{CL}(\text{A.cm}^{-2}) = \frac{4\varepsilon_0}{9} \sqrt{\frac{2q_e}{m_e}} \frac{V_{PK}^{3/2}}{d^2}$$

où  $\varepsilon_0$  est la permittivité du vide.

Dans notre cas ( $V_{PK} = 15$  kV et  $d = 2$  mm) on trouve une densité de courant de saturation de l'ordre de  $100 \text{ A/cm}^2$ . Si on considère un élément de surface de la photocathode de  $93 \text{ }\mu\text{m}$  (largeur de collection) par  $10,8 \text{ }\mu\text{m}$  (qui sera imagé sur 1 pixel de  $20 \text{ }\mu\text{m}$  de la CCD), on obtient un courant de saturation de l'ordre d'un mA, soit environ 6000 électrons par picoseconde. Nous verrons dans la section suivante qu'avec cette valeur l'effet de charge d'espace s'est déjà très largement développé.

Nous avons observé en fonction de l'intensité contrôlée du signal incident à  $3\omega$  la linéarité de :

- l'intensité du signal en mode statique (effet de charge d'espace non visible),
- l'intensité du signal intégré en temps en mode dynamique (effet de charge d'espace visible).

Nous n'avons pas observé d'effet de saturation de la photocathode dans un régime d'intensité de signal incident plus de 100 fois supérieur à l'apparition de l'effet de charge d'espace.

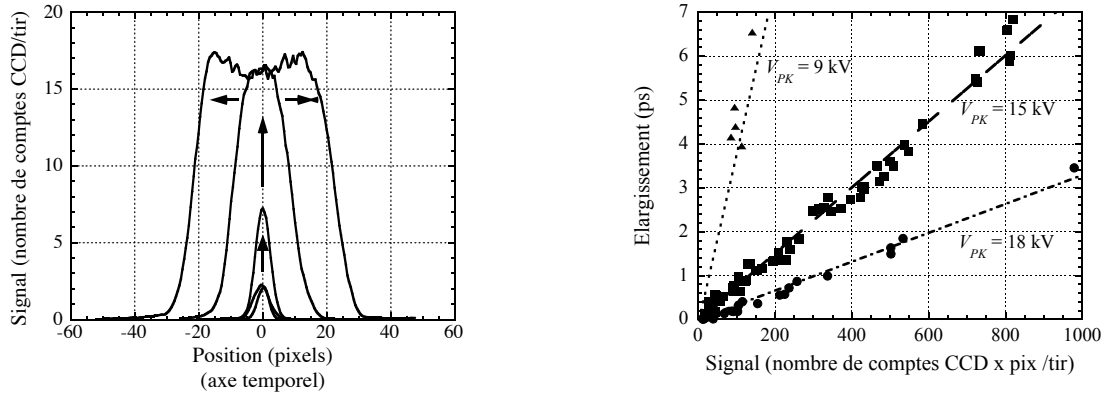
### 3.3.2 Effet de charge d'espace

Pour obtenir une résolution temporelle, la photocathode en entrée de la caméra à balayage de fente convertit les photons en électrons afin de pouvoir appliquer un champ électrique dépendant du temps. Cependant, lorsque le signal est suffisamment intense, les électrons sont en grand nombre et se repoussent les uns les autres par le jeu des forces coulombiennes (effet de charge d'espace). Aussi, la répulsion distord le paquet d'électrons, notamment dans la direction longitudinale, et la résolution temporelle s'en trouve dégradée. On peut se reporter aux figures présentées en 3.30 pour s'en convaincre.

La figure 3.30(a) présente une coupe selon l'axe temporel du signal obtenu en sortie de caméra à balayage de fente, pour différentes intensités de signal  $3\omega$  en entrée de la caméra à balayage de fente. On voit que l'intensité maximale augmente jusqu'à saturer : la forme gaussienne alors s'élargit, mais l'intégrale du signal reste linéaire avec le signal incident (Cf. section précédente).

L'élargissement temporel est présenté sur la figure 3.30(b) en fonction de l'intégrale des courbes de la figure 3.30(a) (quantité proportionnelle au signal  $3\omega$  incident). L'élargissement est obtenu en déconvoluant de la largeur du signal à faible signal incident. On voit que l'élargissement temporel mesuré est linéaire avec l'intensité du signal  $3\omega$  en entrée de caméra. On se rend compte que l'effet de charge d'espace existe dès les intensités de signal incident les plus faibles.

On peut trouver dans la littérature différentes sources concernant l'incidence de l'effet



(a) Signal obtenu en sortie de caméra à balayage de fente pour différentes intensités de signal  $3\omega$  en entrée de la caméra à balayage de fente. Une coupe est réalisée selon l'axe temporel, pour une rangée de pixels de la caméra CCD. L'intensité du signal est en nombre de comptes par tir. Les flèches indiquent un signal  $3\omega$  incident croissant.

(b) Le signal représente l'intégrale du nombre de coups CCD par tir obtenu en réalisant une coupe selon l'axe temporel pour une rangée de pixels de la caméra CCD, pour trois conditions de tension appliquée sur la photocathode (9, 15 et 18 kV). Les courbes en pointillés, tirets et tiret-points sont des ajustement linéaires des données expérimentales correspondant aux tensions de 9, 15 et 18 kV respectivement.

**Fig. 3.30:** Mise en évidence d'un effet de charge d'espace.

de charge d'espace sur la résolution temporelle : voir par exemple Niu [Niu *et al.* 81], Monastyrski [Monastyrski *et al.* 99], Degtyareva [Degtyareva *et al.* 98], Siwick [Siwick *et al.* 02], ou bien encore Qian [Qian *et al.* 02a] [Qian *et al.* 02b]. Pour quantifier l'élargissement temporel dû à l'effet de charge d'espace, Qian propose l'expression suivante :

$$\Delta t_{ce} = \frac{\sqrt{q_e m_e} L^2}{4\sqrt{2}\pi\epsilon_0} \frac{N_e}{r_{eq}^2 V_{PK}^{3/2}} \quad (3.8)$$

où  $(-q_e)$  et  $m_e$  sont la charge et la masse de l'électron,  $L$  est la longueur du tube de la caméra à balayage de fente,  $N_e$  est le nombre d'électrons,  $\epsilon_0$  est la permittivité du vide et  $r_{eq}$  est le rayon du faisceau d'électrons.

Déjà, on peut noter que les résultats obtenus sont en accord avec la relation de proportionnalité proposée entre l'élargissement temporel et le nombre d'électrons.

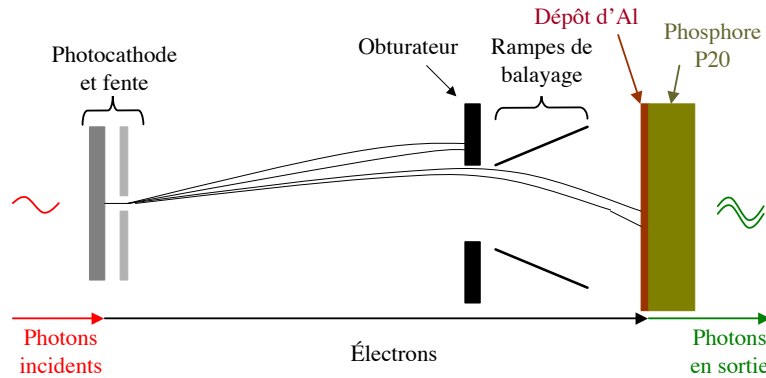
Nous nous proposons dans cette fin de section de comparer nos résultats avec le coefficient de proportionnalité proposé par Qian. Pour ceci, il nous faut obtenir une valeur de rayon équivalent et savoir combien d'électrons sont convertis pour une impulsion laser en entrée de caméra à balayage de fente.

**Rayon équivalent** Les conditions expérimentales des résultats présentés ici correspon-  
daient à une configuration du signal focalisé en entrée de caméra selon l'axe de la fente :  
le signal n'était pas une simple tache. Le rayon équivalent que nous pouvons proposer est  
donc indirect. Si nous partons de la fin de la chaîne de mesure : on peut considérer l'aire  
correspondant à une ligne de pixel sur la caméra CCD le long de l'axe temporel. L'aire  
en entrée correspond donc selon l'axe spatial à la taille du pixel, au facteur de grandis-  
sement près, et selon l'axe temporel (Cf. section 3.2.2.5) à la dimension de la largeur de  
collection. Aussi, l'expression pour le rayon équivalent  $r_{eq}$  exprimée en microns peut-être  
évaluée selon :

$$r_{eq} = \sqrt{\frac{1}{\pi} \frac{\text{taille pixel CCD}}{\gamma} \left( 73 + 148 \cdot \frac{d(mm)}{V_{PK}(kV)} \right)}$$

(Cf. section 3.2.2.1 pour le grandissement  $\gamma$  et section 3.2.2.5 pour la largeur de collection)  
ce qui, pour une taille de pixel de 20 microns et une utilisation à  $V_{PK} = 15$  kV et  $d = 2$   
mm correspond à un rayon équivalent de l'ordre de  $18 \pm 1$   $\mu\text{m}$ .

**Nombre d'électrons** Pour évaluer le nombre d'électrons, on peut remonter la chaîne  
de transformation du signal depuis le nombre de comptes CCD. On peut détailler cette  
chaîne en s'aidant du schéma 3.31. En entrée de caméra à balayage de fente, les photons  
sont convertis en électrons, avec une efficacité de photocathode  $\eta_{PK}$  qui n'est pas déter-  
minée dans cette section (nombre de photoélectrons émis/nombre de photons incidents).  
Les électrons sont extraits par la fente accélératrice (qui pratique une première sélection  
parmi les photoélectrons), et refocalisés vers le phosphore de sortie par des électrodes (non  
représentées sur ce schéma). Un obturateur est situé en fin de tube juste avant les rampes  
de déflexion, réduisant la transmission  $T_{tube}$  du tube de l'ordre de  $10 \pm 5$  % [Rebuffie 05].  
Les électrons qui franchissent cet obturateur doivent traverser un fin dépôt d'aluminium  
avant de pénétrer dans le phosphore (phosphore P20) et d'être converti en photons. Ce  
dépôt d'aluminium permet d'évacuer les charges en superficie du phosphore.



**Fig. 3.31:** Schéma du tube de la caméra à balayage de fente présentant l'obturateur et le dépôt d'aluminium sur l'écran de phosphore.

Pour reprendre les différentes relations, nous pouvons relier le nombre d'électrons dans une surface  $\pi r_{eq}^2$  dans le tube de la caméra à balayage de fente au nombre de comptes CCD mesuré par tir et intégré sur une ligne de pixels le long de l'axe spatial :

$$N_{comptes\ CCD} = N_{électrons} \times T_{tube} \times T_{Alu} \times \eta_{P20} \times \eta_{CCD} \quad (3.9)$$

avec

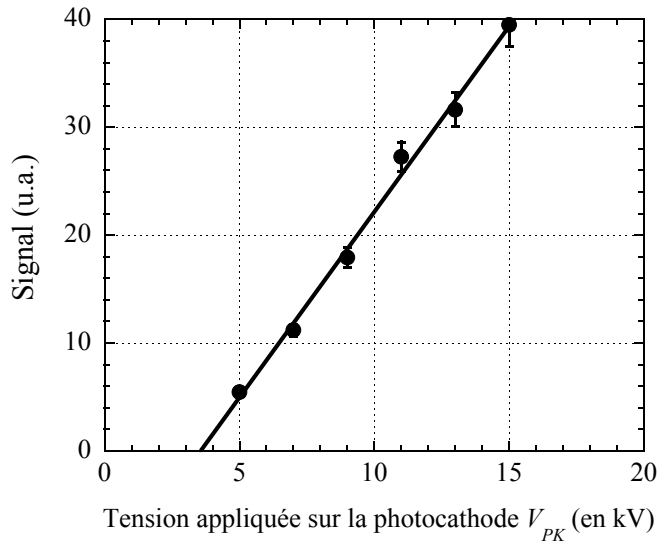
- $T_{tube} = 10 \pm 5 \%$  [Rebuffie 05]
- $T_{Alu} \approx (1,16 \times V_{PK}(V) - 4910)/V_{PK}(V)$  correspondant à la perte d'énergie d'un électron dans le dépôt d'aluminium d'épaisseur de l'ordre de 7000 Å (loi empirique estimée à partir de valeurs tabulées dans la gamme de 9 kV à 18 kV),
- $\eta_{P20}$  le taux de conversion du phosphore (P20) en sortie de la caméra à balayage de fente ( $\eta_{P20} = 0,063 \times V_{PK}(V)$  ph/électron)<sup>2</sup>,
- $\eta_{CCD}$  la sensibilité de la caméra CCD, qui dépend du mode choisi ( $\eta_{CCD}$  est défini par le rapport de l'efficacité de détection quantique  $EQD$  sur le gain  $G_{CCD}$  de la caméra CCD) (typiquement 0,16 coups/photon émis par le phosphore P20).

La perte de vitesse par l'électron lors du passage dans l'épaisseur d'aluminium est à mettre en rapport avec le résultat présenté en figure 3.32. La relation donne le nombre de comptes CCD mesuré d'une trace obtenue en mode statique en fonction de la tension  $V_{PK}$  appliquée sur la photocathode pour un signal incident  $3\omega$  d'intensité constante. L'effet de seuil en abscisse indique qu'il faut une énergie par électron d'au moins  $3,7 \pm 0,4$  keV pour observer du signal.

Nous pouvons maintenant comparer nos résultats de l'effet de la charge d'espace sur la résolution temporelle à ceux prédits par la relation indiquée par Qian. L'élargissement temporel obtenu et ces estimations sont présentées en figure 3.33 en fonction du nombre d'électrons. Nous trouvons un accord qualitatif avec l'expression proposée par Qian. Une comparaison plus rigoureuse ne peut se passer de la simulation des trajets suivis par les électrons, ne serait-ce que pour rendre compte par exemple de l'élargissement du rayon équivalent lors de la propagation des électrons dans le tube (et donc de la densité des électrons en fonction du temps).

Pour avoir un élargissement temporel limité à 1 ps, il faut une quantité de signal qui ne donne typiquement que  $\sim 10$  électrons par tir dans le tube par élément de surface correspondant à une ligne de pixel le long de l'axe temporel (Cf. section 3.5 pour évaluer la quantité de rayonnement équivalent en entrée de caméra). D'un point de vue pratique, on est sûr de ne pas réduire la résolution temporelle de nos mesures par cet effet de charge d'espace dès que l'intensité du signal lu par la CCD ne dépasse pas 10 comptes CCD/tir (dans le cas d'une lecture du signal directement avec la CCD et sans l'amplificateur de luminescence).

<sup>2</sup><http://www.photek.com/characteristics/phosphor.htm>



**Fig. 3.32:** Mise en évidence d'une vitesse minimale de l'électron et de la relation affine liant le nombre de comptes CCD (intégré sur une ligne le long de l'axe temporel) à la tension d'extraction  $V_{PK}$  appliquée sur la photocathode, pour un signal incident d'intensité constante.

### 3.3.3 Bruit de la CCD et gamme dynamique

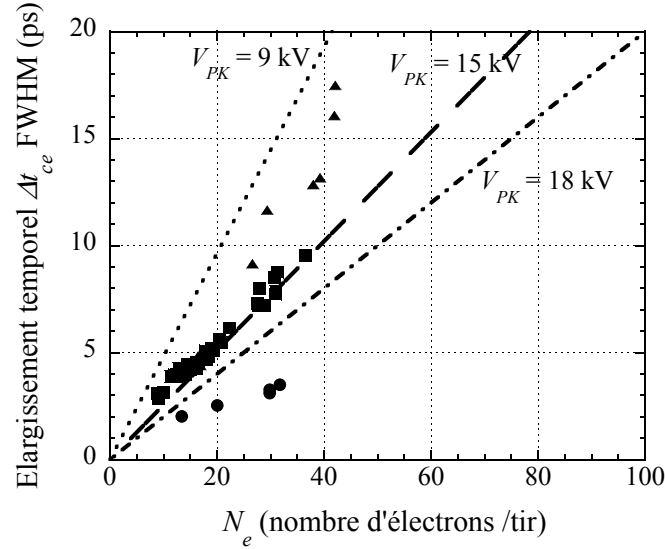
La caméra CCD placée à la fin du système de détection ultra-rapide est une caméra 16 bits (soit 65535 comptes au maximum). Le bruit  $\sigma_{\text{bruit CCD}}$  évolue en fonction du temps d'acquisition selon la relation suivante :

$$\sigma_{\text{bruit CCD}}(\text{Comptes CCD}) = (4,1 \pm 0,2) + (0,66 \pm 0,02) \times \sqrt{t_{\text{expo}}(\text{s})}$$

où  $t_{\text{expo}}$  est le temps d'acquisition de la caméra CCD et  $\sigma_{\text{bruit CCD}}$  est évalué à partir d'histogrammes d'images de bruits de fond.

La figure 3.34 présente la mesure de deux signaux  $3\omega$  séparés de 50 ps par la caméra à balayage de fente. Cette mesure est accumulée sur une seconde (1000 tirs laser au kHz). On peut voir que le rapport signal sur bruit est essentiellement limitée vers le haut par la capacité de comptage de la caméra CCD et vers le bas par le bruit de la CCD. Il peut atteindre 10000 :1, ce qui est bien meilleur que ce qui peut être mesuré en mode monocoup (environ 10 :1) avec le même type de CBF équipée d'un amplificateur de luminescence [Gallant 98].

Il est à noter dans ce mode d'utilisation (lecture de la CBF directement par une CCD), la sensibilité de l'instrument est relativement faible. En revanche, le bruit intrinsèque de



**Fig. 3.33:** *Elargissement du signal mesuré selon l'axe temporel en fonction du nombre d'électrons  $N_e$  dans le tube dans la surface équivalente  $\pi r_{\text{eq}}^2$ . Les mesures correspondant aux cas où  $V_{PK}$  vaut 9, 15 et 18 kV sont respectivement représentées par des triangles, des carrés et des points. Les courbes d'ajustement par des fonctions linéaires correspondantes sont respectivement en pointillés, tirets longs, et traits-points.*

la CBF est très largement dominé par celui de la CCD (Cf. section 3.5).

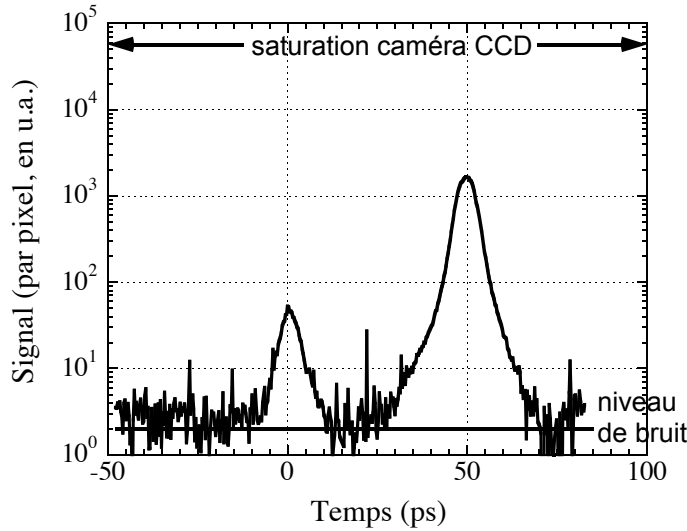
### 3.3.4 Utilisation d'un amplificateur de luminescence

Afin d'amplifier le signal de la caméra à balayage de fente et d'obtenir une meilleure sensibilité (seuil de détection plus bas), nous avons inséré un amplificateur de luminescence (A.L.) entre la sortie de la caméra à balayage de fente et l'entrée de la caméra CCD [Eagleton *et al.* 03].

Nous allons ici exposer le principe de fonctionnement de l'amplificateur de luminescence. Nous présentons également les caractéristiques essentielles de l'amplificateur, à savoir son gain et le bruit qu'il engendre. Une étude plus détaillée a été réalisée par Marion Harmand [Harmand 05] au sein du laboratoire CELIA.

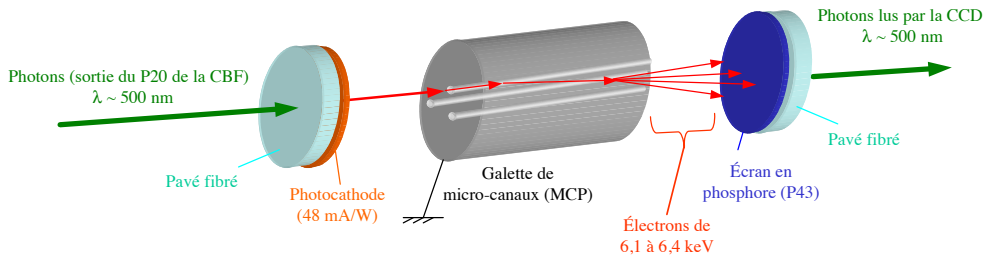
#### 3.3.4.1 Principe

Un schéma du principe de fonctionnement de cet amplificateur est présenté en figure 3.35. Les photons émis par le phosphore P20 de la caméra à balayage de fente (venant de la gauche sur le schéma) sont convertis en électrons au niveau de la photocathode de



**Fig. 3.34:** Mesure de deux impulsions laser triplées en fréquence et séparées de 50 ps résolue temporellement. L'une a été atténuée d'un facteur proche de 30 par rapport à l'autre. Cette mesure est accumulée sur une seconde (1000 tirs au kHz).

l'amplificateur. Les électrons ainsi générés sont multipliés par une galette de microcanaux (MCP pour *MicroChannel Plate*) et accélérés à des énergies voisines de 6,1 à 6,4 keV jusqu'à un écran de phosphore (P43). Les électrons sont enfin convertis à nouveau en photons avant d'être comptés par la caméra CCD.



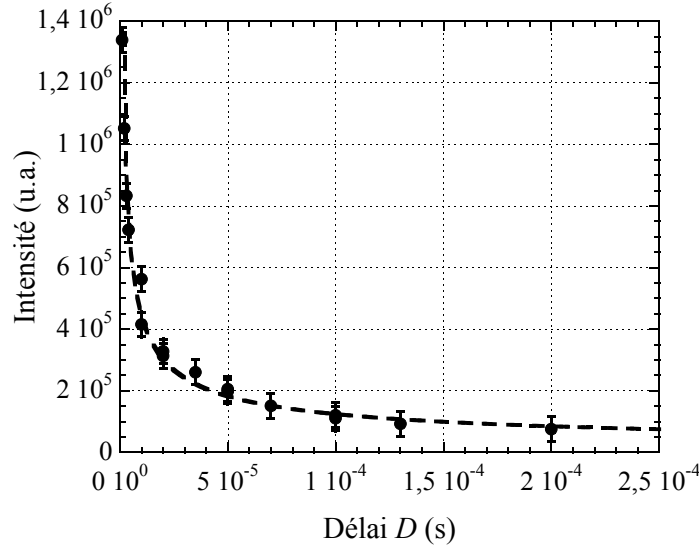
**Fig. 3.35:** Schéma de la transformation du signal à travers l'amplificateur de luminescence.

### 3.3.4.2 Gains

Un signal de déclenche issu du laser permet de contrôler le début de la mise sous tension de la photocathode de l'amplificateur de luminescence. Nous pouvons contrôler le délai  $D$  entre le signal de déclenche et la mise sous tension de la photocathode de l'amplificateur de luminescence, ainsi que la durée  $W$  pendant laquelle la tension est appliquée. Le gain

$G$ , dit "gain constructeur", permet, quant à lui, de contrôler la multiplication des électrons via le niveau des tensions appliquées.

L'émission produite par le phosphore de la CBF (et amplifié par l'amplificateur de luminescence) est présentée en figure 3.36 en fonction du temps. Le profil temporel de l'émission est bien reproduit par une décroissance en  $1/t^{1/2}$ .



**Fig. 3.36:** Émission produite par le phosphore de la CBF en fonction du temps. Le profil temporel est obtenu en faisant varier le délai entre le signal incident sur la CBF et la mise sous tension de la photocathode de l'amplificateur de luminescence. La durée  $W$  d'application des tensions est de 500 ns.

Le gain observé de l'amplificateur  $G_{A.L.}$  dépend ainsi de la durée de mise sous tension de la photocathode de l'amplificateur de luminescence. Il s'exprime en photons par photons et représente le rapport du nombre de photons en sortie de l'amplificateur sur le nombre de photons en entrée. Il dépend du gain instantané  $G_{inst}$  par la relation :

$$G_{A.L.}(W, T) = \frac{G_{inst} \times \int_0^W f(t) dt}{\int_0^T f(t) dt}$$

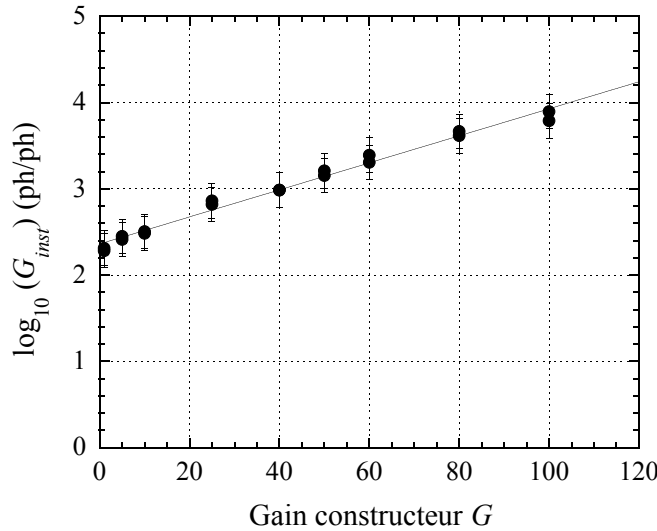
où  $f(t)$  est le profil temporel de l'émission issue du phosphore de la CBF,  $W$  la durée d'application des tensions et  $T$  la période des impulsions laser (1 ms).

Avec  $f(t) \sim t^{-1/2}$ , le gain observé devient :

$$G_{A.L.} = G_{inst} \cdot \left( \frac{W}{T} \right)^{1/2}$$



L'évolution du gain instantané  $G_{inst}$  en fonction du paramètre constructeur  $G$  est indiqué en figure 3.37. Il a été mesuré et correspond aux caractéristiques fournies par le constructeur.



**Fig. 3.37:** Logarithme décimal du gain lumineux instantané en fonction du gain constructeur (de 1 à 100).

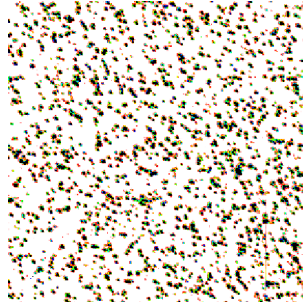
### 3.3.4.3 Bruit

L'amplificateur ajoute du bruit au signal étudié. Ce bruit est qualifié de "bruit de grenaille" : il s'agit de points intenses distribués aléatoirement sur l'image lue par la CCD. Ils sont le produit de l'émission spontanée d'un photoélectron par la photocathode de l'amplificateur de luminescence sous tension. L'allure de ce bruit est présentée en figure 3.38. L'intensité de ces points est constante. Le nombre de points de grenaille est proportionnel au nombre de déclenche ainsi qu'à la durée pendant laquelle on applique une tension sur la photocathode de l'amplificateur de luminescence.

Pour des temps d'exposition longs, il y a un empilement des points de grenaille, ce qui tend à lisser le bruit de fond. Ainsi, l'écart-type constitue le bruit net qui va limiter la détection. L'expression du bruit est donnée par :

$$B(G_{inst}, N_{déclenches}, W)(\text{Comptes CCD}) = (0,11 \pm 0,02) \times G_{inst}(\text{ph/ph}) \times \sqrt{N_{déclenche} \cdot W(\text{s})}$$

Le signal mesuré étant proportionnel à  $G_{inst} \cdot N_{tirs} \cdot \sqrt{W}$ , le rapport signal sur bruit est proportionnel à  $\sqrt{N_{déclenches}}$ . Aussi, nous avons intérêt à augmenter le nombre de tirs



**Fig. 3.38:** Image CCD obtenue après insertion de l'amplificateur de luminescence et pour une acquisition de bruit de fond de 10 s. De nombreux "points" de bruit sont visibles.

accumulés afin de faire émerger le signal du bruit. Cependant, nous serons limités par la limite de comptage imposée par la caméra CCD. Il suffit alors d'ajuster le gain  $G$  et/ou la durée  $W$  de mise sous tension de la photocathode pour éviter cette saturation.

#### 3.3.4.4 Seuil de détection

Le système de détection X ultrarapide nécessite un nombre de photons minimal afin de détecter le rayonnement. A l'aide de l'efficacité  $\eta_{C.B.F.}$  de conversion de la caméra à balayage de fente ( $\eta_{C.B.F.} = 0,3$  "photon P20" pour un photon X émis dans la raie  $\text{He}_\alpha$  de l'argon —énergie de l'ordre de 3,14 keV— collecté sur la photocathode, Cf. section 3.5) et des observations sur le bruit généré par l'amplificateur de luminescence (Cf. section 3.3.4), nous pouvons faire ici l'évaluation de ce seuil de détection.

Le lien entre le nombre  $N_{CCD}$  de comptes obtenus avec la caméra CCD et le nombre  $N_{ph \text{ He}_\alpha}$  de photons par tir émis dans la raie  $\text{He}_\alpha$  et collectés par la photocathode de la CBF est donné par :

$$N_{CCD} = N_{ph \text{ He}_\alpha} \times \eta_{C.B.F.} \times N_{tirs} \times G_{A.L.} \times \eta_{CCD}$$

où  $N_{tirs}$  est le nombre de tirs,  $\eta_{C.B.F.}$  est l'efficacité de conversion de la caméra à balayage de fente,  $G_{A.L.}$  est le gain de l'amplificateur de luminescence, et  $\eta_{CCD}$  est l'efficacité de conversion de la caméra CCD.

Avec un gain de l'amplificateur valant typiquement 3000 ( $G = 100$  et  $W = 150 \mu\text{s}$ ), une acquisition de 900 s, avec 40 tirs par seconde (Cf. section 2.3.4) nous a permis d'obtenir  $5,4 \cdot 10^6$  comptes CCD intégré selon l'axe temporel pour  $20 \mu\text{m}$  selon l'axe spatial (taille d'un pixel) pour un photon  $\text{He}_\alpha$  par tir sur la zone de collection correspondante sur la photocathode de la CBF (Cf. section 3.5). Avec une vitesse de balayage caractéristique de  $13 \pm 1 \text{ ps/mm}$  (Cf. section 3.2.3.2), un signal durant 3 ps sera étalé sur 11,5 pixels. L'amplitude obtenue sur un  $\text{pixel}^2$  sera de  $1,4 \cdot 10^6$  comptes CCD pour un photon  $\text{He}_\alpha/\text{tir}/\text{ps}$  sur la zone de collection correspondante sur la photocathode de la CBF. Avec les fluctuations

du bruit qui sont de 1900 comptes CCD pour un temps d'exposition correspondant (Cf. section 3.3.4.3), le seuil de détection ainsi obtenu est de :

$$\text{Seuil de détection} = 1,35 \cdot 10^{-3} \text{ photon He}_\alpha / \text{tir} / \text{ps} / \text{élément de surface}$$

où l'élément de surface de collection sur la photocathode de la CBF correspond au produit de 10,8  $\mu\text{m}$  par la largeur de collection ( $\sim 93 \mu\text{m}$ ). Soit encore :

$$\text{Seuil de détection} = 1,35 \text{ photon He}_\alpha / \text{tir} / \text{ps} / \text{mm}^2$$

où l'énergie du photon X émis dans la raie  $\text{He}_\alpha$  de l'argon est voisine de 3,14 keV.

### 3.4 Résolution spectrale : couplage avec un cristal

Afin de résoudre en spectre le rayonnement issu du plasma, nous avons couplé à la caméra à balayage de fente un cristal qui sépare les longueurs d'onde le long de l'axe spatial de la photocathode. Plutôt qu'un cristal plan, nous pouvons utiliser un cristal courbé afin de collecter au mieux le signal, avec une courbure selon un support sphérique [Young *et al.* 98] [Missalla *et al.* 99], toroïdal [Hauer *et al.* 85] ou conique [Martinolli *et al.* 04] [Andiel *et al.* 03]. Pour ses propriétés de focalisation et de gamme énergétique accessible, nous avons choisi un cristal tronc-conique en phtalate de potassium, dont la composition est  $\text{CO}_2\text{HPhCO}_2\text{K}$  avec *Ph* désignant le phtalate ( $\text{C}_{10}\text{H}_8$ ). On désignera ce cristal par cristal KAP (pour "*potassium acid phtalate*"). L'agencement interne des atomes dans ce cristal est orthorhombique, avec un paramètre  $2d$  interplanaire valant 26,64 Å. Il a été réalisé par la société S<sup>t</sup> Gobain Crismatec, et ses caractéristiques sont [Geindre *et al.* 02] :

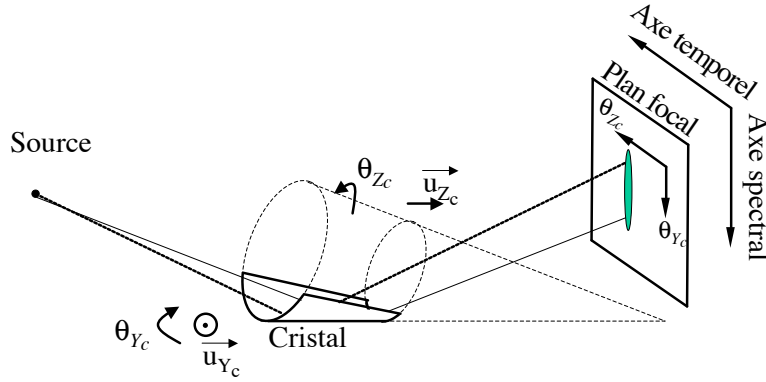
- demi-angle d'ouverture du cône : 0,3 radians (17,2°)
- rayon de courbure minimum : 88,65 mm
- rayon de courbure maximum : 103,42 mm
- dimensions : 50 x 40 mm<sup>2</sup>

Nous présentons ici la géométrie selon laquelle a été implantée ce cristal dans le système de détection ultra-rapide. Nous établirons également ses propriétés relatives à la réflectivité, la focalisation, les dispersions spectrale et temporelle ainsi que la résolution spectrale finalement réalisée.

#### 3.4.1 Montage

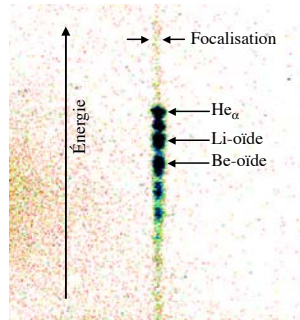
L'implantation du cristal tronc conique dans notre système de détection est représentée en figure 3.39. La forme générale du cône est indiquée en traits pointillés, tandis que le cristal est en trait plein. Nous avons disposé deux moteurs permettant d'effectuer une

rotation selon  $\theta_{Y_c}$  et  $\theta_{Z_c}$  centrés sur le cristal comme indiqué sur le schéma (motorisation non représentée) afin de contrôler la focalisation et le positionnement du spectre sur le plan constitué par la photocathode. Les rotations  $\theta_{Y_c}$  et  $\theta_{Z_c}$  ont une influence sur la position du spectre sur les axes "spectral" et "temporel" du plan de la photocathode respectivement. L'axe de la rotation  $\theta_{Y_c}$  est perpendiculaire au plan de la figure ( $\vec{u}_{Y_c}$ ) et celui de  $\theta_{Z_c}$  est parallèle à l'axe source-plan focal ( $\vec{u}_{Z_c}$ ).



**Fig. 3.39:** Schéma indiquant l'implantation du cristal tronç conique dans le système de détection ultra-rapide.

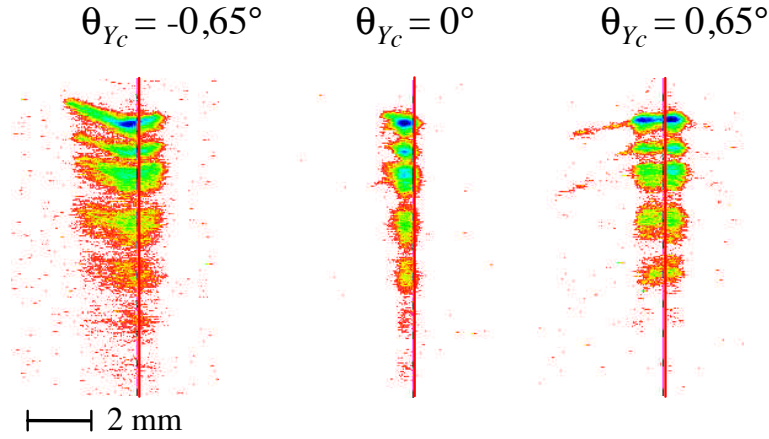
En plaçant une caméra CCD au plan focal, nous obtenons le spectre caractéristique de l'argon correspondant à la raie  $\text{He}_\alpha$  et ses satellites. Nous présentons un tel spectre à la figure 3.40.



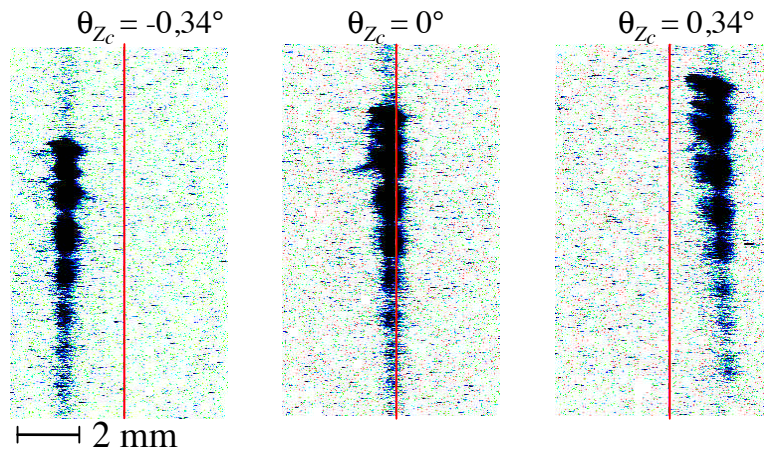
**Fig. 3.40:** Image d'un spectre de l'émission X d'agrégats d'argon irradiés par laser obtenu à l'aide du cristal conique (au plan de focalisation).

Nous avons cherché à quantifier les effets des variations d'angle du cristal sur le positionnement et la focalisation du spectre. Nous présentons sur les figures 3.41 et 3.42 les spectres obtenus au plan focal, pour des variations de  $\theta_{Y_c}$  et  $\theta_{Z_c}$  respectivement. Nous observons que  $\theta_{Y_c}$  permet essentiellement de contrôler la focalisation, tandis que  $\theta_{Z_c}$  permet d'essentiellement de contrôler la position du spectre (dans les deux directions).

Ces deux angles ont été ajustés de façon à obtenir à la fois la meilleure focalisation et le meilleur positionnement du spectre sur la surface de collection de la photocathode.



**Fig. 3.41:** Effet d'une variation en  $\theta_{Y_c}$  sur la focalisation du spectre. La ligne indique un repère fixe. L'échelle indiquant 2 mm est valable pour les deux axes.  $\theta_{Y_c} = 0^\circ$  indique la meilleure focalisation obtenue.



**Fig. 3.42:** Effet d'une variation en  $\theta_{Z_c}$  sur la focalisation du spectre. La ligne indique un repère fixe. L'échelle indiquant 2 mm est valable pour les deux axes.  $\theta_{Z_c} = 0^\circ$  indique le centrage du spectre sur la surface de collection de la photocathode.

### 3.4.2 Réflectivité

Pour estimer la réflectivité du cristal tronc-conique de KAP, nous avons utilisé le spectromètre intégré dans le temps calibré en absolu (détermination du nombre de photons émis) et l'efficacité de détection de la caméra CCD.

Pour rappel (Cf. section 2.4.4 et équations 2.24 à 2.26), le nombre  $N_{CCD}$  de comptes CCD enregistrés par la CCD du spectromètre intégré dans le temps (cristal de Mica) est donné par :

$$N_{CCD} = \int N_{photons}(E) \cdot N_{tirs} \cdot \frac{l}{D} \cdot T_{filtre}(E) \cdot EQD(E) \cdot \eta_{conversion}(E) \cdot R_{int} dE$$

où  $N_{photons}(E) dE$  est le nombre de photons X émis par tirs avec une énergie entre  $E$  et  $E + dE$ ,  $N_{tirs}$  est le nombre de tirs,  $l$  et  $D$  sont respectivement la largeur du cristal et la distance entre la source et le cristal,  $T_{filtre}$  est la transmission des filtres,  $EQD$  est l'efficacité quantique de détection,  $\eta_{conversion}$  est l'efficacité de conversion de la caméra CCD et  $R_{int}$  est la réflectivité intégrée du cristal.

Aussi, pour de mêmes conditions d'interaction (même source de rayonnement), la même caméra CCD de lecture et les mêmes filtres, une mesure de spectre avec le spectromètre haute résolution (cristal en mica) et une mesure de spectre avec le cristal conique (cristal en KAP) nous permettent d'obtenir la réflectivité du cristal conique selon la relation :

$$R_{int_{KAP\#2}} = \frac{N_{CCD_{KAP}}}{N_{CCD_{mica}}} \times \frac{(l/D)_{mica}}{(l/D)_{KAP}} \times R_{int_{mica\#4}}$$

où les indices  $|_{mica}$  et  $|_{KAP}$  indiquent les valeurs relatives aux configurations expérimentales pour lesquelles étaient utilisées respectivement le cristal en mica et en KAP, et #2 et #4 indiquent les ordres de diffraction considérés sur ces deux cristaux (Cf. équation 2.23).

Ainsi, nous obtenons la réflectivité intégrée du cristal tronc-conique à l'ordre 2 :  $R_{int_{KAP\#2}} = (1,4 \pm 0,6) \cdot 10^{-4}$  rad, dans la gamme spectrale qui nous intéresse, autour de la raie  $He_{\alpha}$  de l'argon ( $\sim 3,14$  keV).

Cette mesure concorde avec des résultats récemment obtenus avec un cristal semblable [Martinolli *et al.* 02], et indique une progression par rapport à d'anciennes références [Burek 76].

### 3.4.3 Focalisation

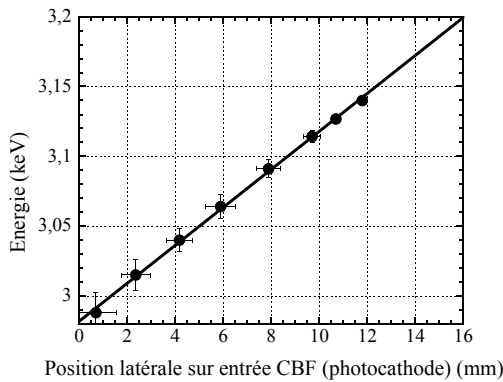
Une image du spectre tel qu'il peut être focalisé au mieux est présentée en figure 3.40. On peut voir que le signal a, selon l'axe spatial, une largeur de l'ordre de 500  $\mu m$  à mi-hauteur. Il s'agit en fait de l'image de la source d'émission X réalisée par le cristal avec un grandissement proche de  $-1$  : la géométrie de détection est celle détaillée en section 4.1.1 sur la figure 4.1(a) (axe de détection perpendiculaire à l'axe de propagation du laser d'interaction dans le jet d'agrégats). La caméra à balayage de fente ayant une surface de collection de l'ordre de 100  $\mu m$ , il y a une perte substantielle de signal à l'entrée de la caméra à balayage de fente. Cependant, cette largeur imposée par la taille de la source nous permet de positionner plus aisément le spectre en entrée de la caméra à balayage de fente.

### 3.4.4 Dispersion spectrale et temporelle

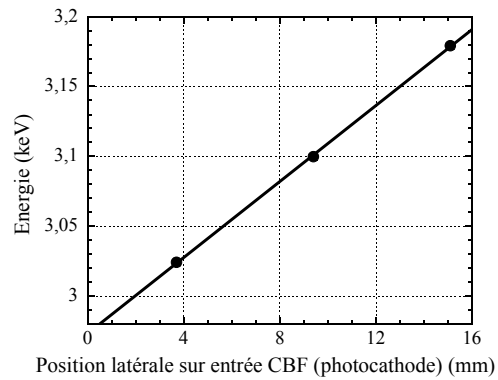
#### 3.4.4.1 Dispersion spectrale

Nous avons déterminé la dispersion spectrale du cristal. Le résultat est présenté en figure 3.43(a). Nous trouvons une dispersion spectrale relativement linéaire avec une pente de :  $(13,60 \pm 0,01)$  eV/mm sur le plan de la photocathode de la CBF.

J.-P. Geindre et P. Audebert du laboratoire LULI à Palaiseau ont réalisé un programme de tracé de rayons, "Spectroconic", permettant de rendre compte de la focalisation d'un spectre X obtenue au moyen d'un cristal tronc-conique. Les résultats de ce programme concernant la dispersion spectrale, pour la gamme spectrale nous intéressant, est présentée en figure 3.43(b). Nous trouvons un très bon accord avec nos mesures : une dispersion linéaire de  $13,70 \pm 0,01$  eV/mm à l'ordre 2 du cristal KAP.



(a) Relation de dispersion du cristal conique : les résultats expérimentaux sont représentés par des ronds. La droite en trait plein représente un ajustement linéaire des données expérimentales.



(b) Relation de dispersion du cristal conique : les résultats du programme de simulation "Spectroconic" sont représentés par des ronds. La droite en trait plein représente un ajustement linéaire de ces données.

**Fig. 3.43:** Dispersion spectrale du cristal conique.

#### 3.4.4.2 Dispersion temporelle

La longueur du trajet réalisé par le signal X pour arriver jusqu'au plan de focalisation du cristal, *i.e.* la photocathode de la caméra à balayage de fente, dépend de la longueur d'onde. On peut évaluer la dispersion temporelle induite par les différents chemins optiques à l'aide de la figure 3.44. Deux longueurs d'onde,  $\lambda_1$  et  $\lambda_2$ , avec  $\lambda_2 > \lambda_1$ , issues d'une source S sont réfléchies par le cristal en respectant la loi de Bragg, et arrivent au plan

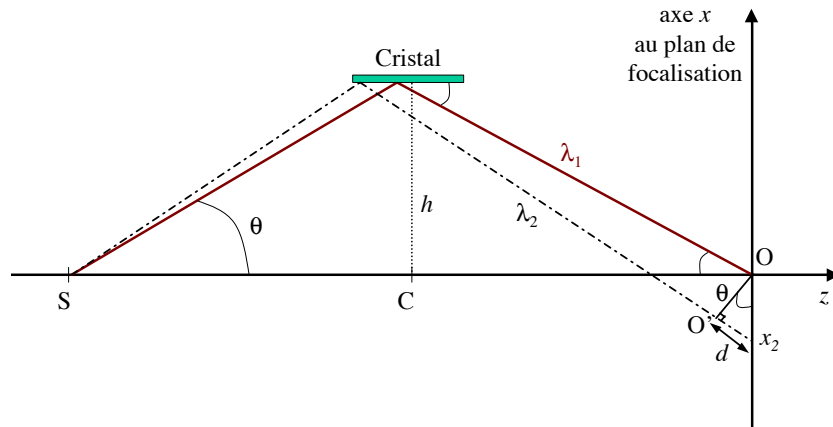
de focalisation ( $z = 0$ ). Le signal correspondant à la longueur d'onde  $\lambda_1$  est déjà arrivé que la radiation correspondant à la longueur d'onde  $\lambda_2$  n'a pas encore atteint l'entrée de l'instrument. La distance restant à parcourir pour le second signal correspond à  $d = O'x_2$ , qui peut être évalué selon :  $d = x_2 \cdot \sin(\theta)$ .

Avec :

- $h = 100 \pm 5$  mm,
  - $CO = 310 \pm 5$  mm,
  - $SO = 650 \pm 5$  mm,
- nous obtenons :  $\theta = 17,9 \pm 0,6$  degrés.

L'écart temporel entre deux radiations par unité de longueur au niveau de la fente est alors évalué à :

$\Delta t/x = \sin(\theta/c_0) = 1,0 \pm 0,1$  ps/mm, où  $c_0$  est la vitesse de lumière dans le vide. Cela signifie que deux radiations, séparées de 1 mm au plan de focalisation, ont un écart de 1 ps du fait de la différence des chemins optiques entre la source et l'entrée de la caméra à balayage de fente.



**Fig. 3.44:** Schéma de la propagation de deux radiations X de longueurs d'onde différentes, avec  $\lambda_1 < \lambda_2$ . La source de rayonnement est en S. L'entrée de la caméra à balayage de fente est centrée en O, selon l'axe x. La position centrale du cristal selon l'axe z est en C.

Selon l'axe spatial, l'instrument a un grandissement ( $\gamma_{sp} = 1,85$ , Cf. section 3.2.2.1), et pour une vitesse de balayage typique de l'ordre de  $13 \pm 1$  ps/mm (Cf. section 3.2.3.2), les images de spectres résolus en temps enregistrées sur la CCD doivent subir une correction numérique de pente  $\alpha = \left(\frac{1/1,85}{13/1}\right) = 0,042 \pm 0,002$  pix<sub>temporel</sub>/pix<sub>spatial</sub>

### 3.4.5 Résolution spectrale

De la section 3.4.4, nous avons obtenu une dispersion spectrale de  $(13,60 \pm 0,01)$  eV/mm. Avec une résolution spatiale de la CBF le long de la photocathode de  $49 \pm 9$   $\mu$ m



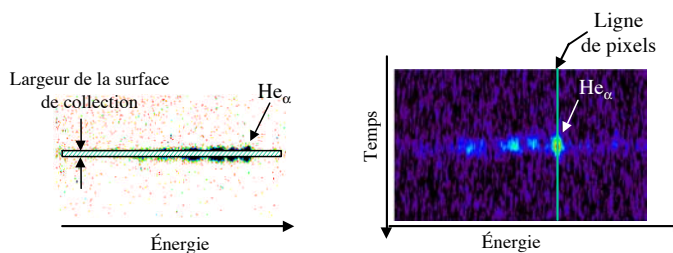
(Cf. section 3.2.2.1), nous pouvons en déduire une résolution spectrale pour le système de détection ultra-rapide de  $0,7 \pm 0,1$  eV. Il est à noter que l'utilisation d'un amplificateur de luminescence ne dégrade qu'un peu la résolution spatiale du système ( $54 \pm 9$   $\mu\text{m}$ ) et ne modifie pas significativement la résolution spectrale.

### 3.5 Calibration absolue dans les X

Une caractéristique fondamentale pour obtenir un système de détection calibré en absolu est la transmission de la caméra à balayage de fente. Le signal  $3\omega$  triplé en fréquence ne fournissant pas une source calibrée en énergie, la détermination de la transmission a été réalisée directement à l'aide de la source X constituée par les agrégats irradiés. En comparant le signal incident sur la photocathode de la caméra à balayage avec le signal correspondant en sortie, la transmission de la caméra s'obtient directement.

Un spectre focalisé par le cristal conique est représenté en figure 3.45 à gauche, avec la taille de la surface de collection indiquée (Cf. section 3.4.2 à propos du cristal conique). D'après la section 3.2.2.5, nous savons que la largeur de la surface de collection correspondant à  $V_{PK} = 15$  kV et  $d = 2$  mm est de 93  $\mu\text{m}$ . Selon l'axe spectral, nous pouvons déterminer la largeur correspondant en sortie à un pixel de la caméra CCD (20  $\mu\text{m}$ ). Avec un grandissement  $\gamma$  de 1,85 (Cf. section 3.2.2.1), nous obtenons une largeur de 10,8  $\mu\text{m}$ .

Un spectre tel que mesuré avec le diagnostic X ultra-rapide avec l'amplificateur de luminescence est présenté en figure 3.45 à droite (Cf. section 5.2.2 à propos des mesures de spectres résolus en temps). Une colonne de pixels est indiquée sur le schéma : elle indique l'endroit pour lequel on somme le signal correspondant à la raie  $\text{He}_\alpha$  selon l'axe temporel.



**Fig. 3.45:** Détermination de la transmission de la caméra à balayage de fente. À gauche : spectre focalisé par le cristal conique, et indication de la taille de la surface de collection. À droite : spectre résolu en temps mesuré en sortie du système de détection.

Le nombre de comptes CCD  $N_{CCD}$  ainsi intégré s'obtient à partir de la relation suivante :

$$N_{CCD} = N_{\text{ph He}_{\alpha}} \times \eta_{C.B.F.} \times G_{A.L.} \times \eta_{CCD} \times N_{tirs} \quad (3.10)$$

avec :

- $N_{\text{ph He}_\alpha}$  le nombre de photons d'énergie correspondant à la raie  $\text{He}_\alpha$  incidents sur la zone définie sur la photocathode,
- $\eta_{C.B.F.}$  l'efficacité de conversion de la caméra à balayage, exprimée en nombre de photons en sortie/"photons  $\text{He}_\alpha$ ",
- $G_{A.L.}$  le gain de l'amplificateur de luminescence (3000 ph/ph pour nos conditions d'utilisation),
- $\eta_{CCD} = \frac{EQD}{\text{Gain}_{CCD}}$  l'efficacité de conversion de la caméra CCD (rapport de l'efficacité quantique de détection sur le gain de la CCD, exprimé en nombre de comptes CCD par photon),
- $N_{\text{tirs}}$  le nombre de tirs laser accumulés.

Avec une efficacité de détection de la caméra CCD valant 0,16 comptes/photon, et les mesures obtenues, nous trouvons pour la transmission de la caméra à balayage de fente :

$$\eta_{C.B.F.} = 0,3 \text{ "photon P20"/"photon X"}$$

évalué avec des photons X correspondant à la raie  $\text{He}_\alpha$  de l'argon (énergie de 3,14 keV) incidents sur la surface de collection de la photocathode.

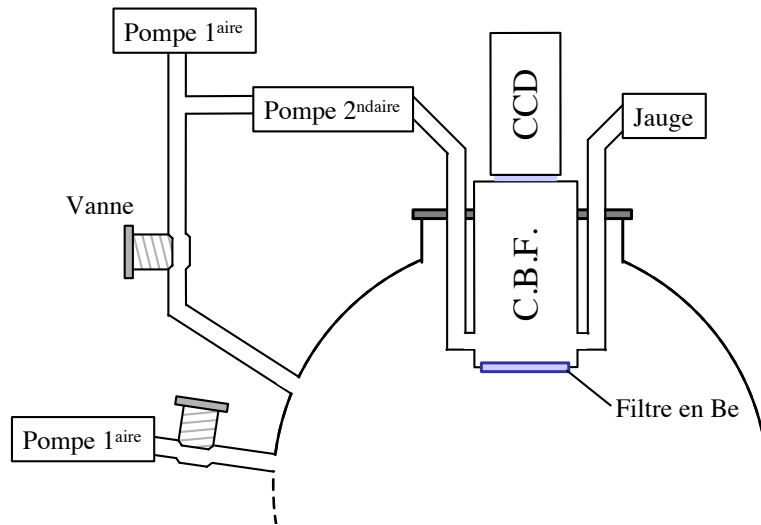
## 3.6 Mise en œuvre

Nous présentons ici des compléments concernant les modalités pratiques de l'utilisation du système de détection. Tout d'abord, le fonctionnement de la caméra à balayage de fente nécessite un vide poussé, ce qui a pour effet de devoir concevoir un système de double vide sur le montage expérimental. Ensuite, l'architecture des systèmes de déclenche est présentée : les rampes de tension de la caméra à balayage de fente, la mise sous tension de la photocathode de l'amplificateur de luminescence, et l'ouverture de la buse contrôlant le jet de gaz doivent être synchrones avec l'impulsion laser d'interaction. Enfin, les différentes corrections à apporter aux données expérimentales sont présentées succinctement.

### 3.6.1 Système sous vide

La caméra à balayage de fente utilise des champs électrostatiques très intenses au niveau de la photocathode, afin d'extraire les électrons. Les champs sont de l'ordre de 7,5 MV/m. Afin d'éviter tout claquage électrique, un vide secondaire très poussé est nécessaire. Nous souhaitons pour cela utiliser la caméra CBF avec une pression inférieure à  $10^{-5}$  mbar au niveau de la photocathode. Cependant, le vide réalisable dans l'enceinte est limité par le moyen mis en œuvre pour créer les agrégats : le jet de gaz limite la pression dans l'enceinte à une pression de l'ordre de quelques  $10^{-2}$  mbar. Aussi, un système a été mis en œuvre afin d'obtenir deux pressions différentes : une pression dans l'enceinte expérimentale distincte de la pression dans la caméra à balayage de fente. Le schéma présenté en figure 3.46 présente la configuration utilisée. Dans un premier temps, la mise

sous vide primaire est réalisé pour les deux compartiments à l'aide d'une pompe primaire commune. Lorsque le vide primaire est atteint, on peut alors isoler les deux systèmes à l'aide de vannes, et réaliser un vide plus poussé dans la caméra à balayage de fente. Les deux "vides" sont alors isolés l'un de l'autre par un filtre de faible épaisseur ( $25\text{ }\mu\text{m}$  de Be) qui transmet le rayonnement X.



**Fig. 3.46:** Schéma présentant le système de compartimentage de l'enceinte expérimentale et de la caméra à balayage de fente. Des vides de l'ordre de quelques  $10^{-2}$  mbar et de quelques  $10^{-6}$  mbar sont atteints respectivement dans les deux sous-systèmes.

Nous pouvons ici attirer l'attention sur la nécessité d'apporter un soin particulier à la jonction entre la sortie de la caméra à balayage de fente (écran en phosphore) et la caméra CCD. L'assemblage des deux composants doit en effet être réalisé une fois le vide réalisé dans l'enceinte expérimentale, sous peine de voir un intervalle de près de 3 mm, correspondant à la variation du rayon de l'enceinte (diamètre  $\sim 1$  m) lors de la mise sous vide.

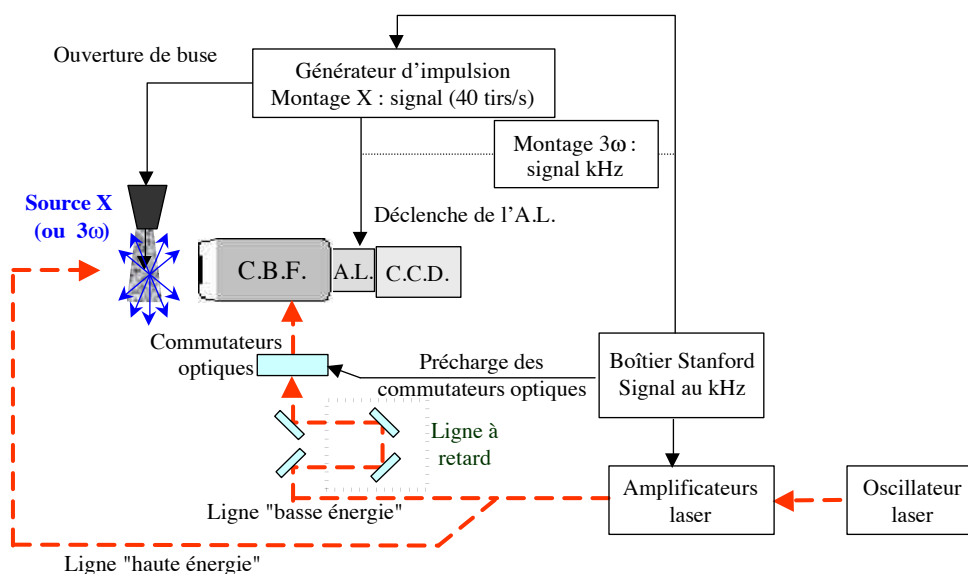
### 3.6.2 Système de déclenches

Tout le système laser est commandé par un unique boîtier électrique (Stanford) qui délivre des impulsions électriques synchronisées, à la cadence aussi élevée que le kilo-Hz. Nous avons asservi nos déclenches à ce même boîtier de commande, qui sert alors d'horloge de référence à tout le montage (y compris au laser). On peut voir les différentes connexions sur la figure 3.47. Les signaux électriques sont représentés en traits fins et continus tandis que les signaux lumineux sont représentés en traits épais et en tirets. Du boîtier maître (Stanford) sont issus trois signaux électriques.

- Un premier signal commande l'ouverture des cellules de Pockels (non représentées) ainsi que la synchronisation des lasers de pompe. Au délai nécessaire à l'impulsion pour atteindre la cible près, ce signal sert effectivement de référence, puisqu'il détermine le moment d'interaction entre l'impulsion laser et les agrégats.

- Un deuxième signal électrique commande la pré-charge des commutateurs optiques de la CBF. Une partie du signal laser vient par la suite déclencher le balayage par effet photorésistif. Ce signal lumineux est prélevé sur le faisceau principal à l'aide d'une lame séparatrice et est ajusté temporellement à l'aide d'une ligne à retard. Ce signal emprunte la ligne laser dite "basse énergie" (Cf. Fig. 2.3), puisque quelques dizaines de microjoules sont nécessaires (Cf. section 3.2.4.3), contre quelques millijoules pour l'impulsion principale (bras "haute énergie").
- Enfin, une troisième impulsion électrique commande un générateur d'impulsion. Celui-ci à son tour commande l'ouverture de la buse par un signal adapté (40 ms d'ouverture toutes les secondes) ainsi que l'amplificateur de luminescence (A.L.).

Par ailleurs, un autre boîtier de tension n'est pas représenté : il s'agit des hautes tensions appliquées en continu au tube de la caméra à balayage de fente.



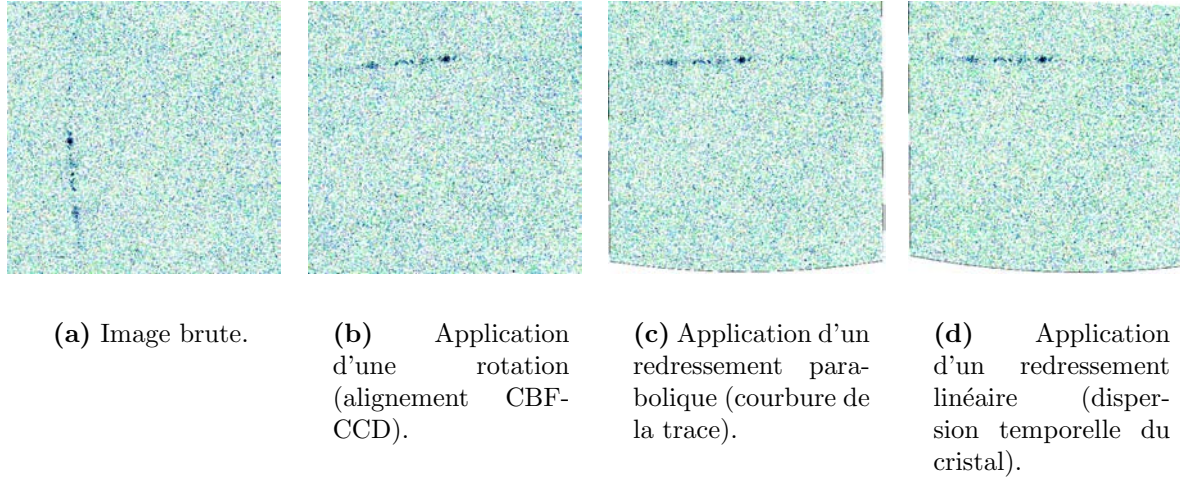
**Fig. 3.47:** Schéma de synchronisation des différentes déclenches.

### 3.6.3 Méthode de reconstruction du spectre résolu en temps

Les corrections à apporter aux données fournies par la caméra à balayage de fente sont de plusieurs natures. On peut trouver une illustration du résultat des différentes étapes du processus de traitement numérique à la figure 3.48.

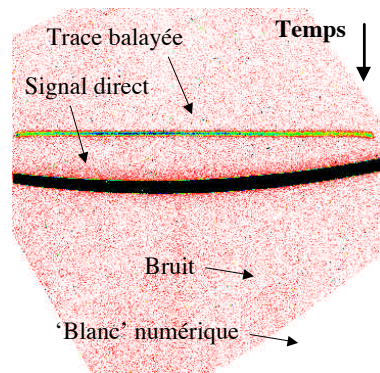
- Tout d'abord, la caméra C.C.D. n'est pas forcément sur le même support que la caméra à balayage de fente : la première est fixée sur la table d'expérimentation, tandis que la seconde est fixée à l'enceinte. L'axe horizontal n'est donc pas le même pour les deux, et il faut effectuer une rotation (correction du "tilt") (Cf. image 3.48(b)).
- Ensuite, il faut prendre en considération les effets de courbure statique et dynamique (Cf. sections 3.2.2.3 et 3.2.3.1). Ces deux effets concourent à une courbure de la trace selon l'axe temporel : une correction parabolique est à réaliser (Cf. image 3.48(c)).

- Alors, il faut corriger de la dispersion temporelle apportée par le cristal (Cf. section 3.4.4) (Cf. image 3.48(d)).
- Enfin, pour un grand nombre d'acquisition de données, il faut "recaler" les images pour compenser les effets de gigue lente aux temps longs avant de les sommer.



**Fig. 3.48:** Corrections successives opérées sur une image de spectre X résolu en temps.

Nous présentons en figure 3.49 une autre image telle que nous pouvons l'obtenir après ces corrections, mais dans le cas d'une détection sans résolution spectrale (Cf. Chap. 4). Nous voyons que la trace balayée est redressée. Le signal direct correspond aux photons X qui n'ont pas été convertis par la photocathode et qui illuminent l'écran de phosphore de la CBF. Ce signal a initialement une allure rectiligne, mais il devient courbé conjointement à la trace balayée qui est redressée. Le "blanc numérique" correspond à une zone qui ne contient pas de signal mesuré, du fait de la rotation de l'image (pareillement, des points de l'image initiale sont écartés).



**Fig. 3.49:** Image obtenue après corrections pour un montage sans résolution spectrale. On peut distinguer le signal mesuré (trace balayée) des photons incidents allant directement sur l'écran de phosphore (signal direct).

### 3.7 Bilan des caractéristiques du système de détection X ultra-rapide

Nous présentons un récapitulatif des principales caractéristiques du cristal, de la caméra à balayage de fente ainsi que de l'amplificateur de luminescence aux tableaux 3.2 3.3 et 3.4 respectivement.

Dispersion spectrale	$13,60 \pm 0,01$ eV/mm
Dispersion temporelle	$0,042 \pm 0,002$ pix <sub>temporel</sub> /pix <sub>spatial</sub>
Réflectivité intégrée	$(1,4 \pm 0,6) \cdot 10^{-4}$ rad (à l'ordre 2)
Largeur de focalisation	500 $\mu$ m (image du plasma émetteur)

**Tab. 3.2:** Principales caractéristiques du cristal. La dispersion spectrale est estimée sur le plan de la photocathode de la CBF. La dispersion temporelle est donnée en unité "pratique" sur l'image enregistrée par la CCD.

Champ d'extraction	$7,5 \cdot 10^6$ V/m
Grandissement spatial	$1,85 \pm 0,01$
Résolution spatiale	$49 \pm 9$ $\mu$ m
Focalisation sur axe temporel	$52 \pm 7$ $\mu$ m
Vitesse de balayage	$13 \pm 1$ ps/mm
Résolution temporelle monocoup (photocathode KI)	$900 \pm 200$ fs FWHM
Résolution temporelle mode récurrent (photocathode Pd)	$1,8 \pm 0,3$ ps FWHM
Gigue temporelle	$1,3 \pm 0,2$ ps
Largeur de collection	$93 \pm 10$ $\mu$ m
Transmission	0,3 "photon P20"/"photon He $_{\alpha}$ d'Ar"
Rapport Signal/Bruit maximal	10000 :1
Courbure statique	$(7,1 \pm 0,1) \cdot 10^{-8}$ pix/pix <sup>2</sup> ( $\times$ Position(pix))
Courbure dynamique	$(9,5 \pm 0,2) \cdot 10^{-5}$ pix/pix <sup>2</sup>
Homogénéité (axe spatial)	fluctuations < 10%
Homogénéité (axe temporel)	perte linéaire jusqu'à 50 % du centre aux bords

**Tab. 3.3:** Principales caractéristiques de la caméra à balayage de fente, relatives à une utilisation avec :  $V_{PK} = 15$  kV,  $d = 2$  mm et une photocathode en KI.

Gain (à $G = 100$ et $W = 150$ $\mu$ s)	$3000 \pm 600$ ph/ph
Gain instantané (à $G = 100$ )	$8400 \pm 1700$ ph/ph
Résolution spatiale	$40 \pm 5$ $\mu$ m

**Tab. 3.4:** Principales caractéristiques de l'amplificateur de luminescence.

Le tableau 3.5 présente quant à lui les principales propriétés de l'ensemble de notre système de détection ultra-rapide.

Résolution spatiale	$49 \pm 9 \text{ }\mu\text{m}$
Résolution spectrale	$0,7 \pm 0,1 \text{ eV}$
Résolution temporelle	$1,8 \pm 0,3 \text{ ps}$
Rapport signal/bruit maximal	10000 :1
Seuil de détection	$1,35 \text{ photon He}_\alpha/\text{tir}/\text{ps}/\text{mm}^2$

**Tab. 3.5:** Principales propriétés du système de détection X ultra-rapide. La résolution temporelle est estimée pour une accumulation de 1000 tirs au kHz. Le rapport signal sur bruit obtenu pour la mesure des X (issus de la raie  $\text{He}_\alpha$  de l'argon) ainsi que le seuil de détection ont été déduits de mesures sur 900 s d'accumulation de 40 tirs/seconde. Le seuil de détection est reporté par  $\text{mm}^2$  de surface de collection de la photocathode de la CBF.

# Bibliographie Chapitre 3

- [Andiel *et al.* 03] Andiel U., Eidmann K., Pisani F., Witte K., Uschmann I., Wehrhan O. et Förster E.,  
*Conical x-ray crystal spectrometer for time integrated and time resolved measurements*, Rev. Sci. Instrum. **74** (2003), no. 4, 2369–2374.
- [Bak *et al.* 01] Bak P.A., Calabrese R., Chernousov YU.D., Guidi V., Guidi L., Gurov S.M., Logatchov P.V., Pyata E.E., Tecchio L. et Tsygunov A.S.,  
*Status of a radio-frequency-based streak camera with subpicosecond time resolution*, Laser and Particle Beams **19** (2001), no. 01, 105–109.
- [Boutry *et al.* 82] Boutry B., Cavailler C. et Fleurot N.,  
*P600/650 X-ray streak camera with optimized spatio-temporal resolution*, 15<sup>th</sup> Intl Congress on High Speed Photography and Photonics (Lincoln L. Endelman, ed.), vol. 348, SPIE, 1982, p. 766.
- [Bradley *et al.* 75] Bradley D.J., Roddie A.G., Sibbett W., Key M.H., Lamb M.J., Lewis C.L.S. et Sachsenmaier P.,  
*Picosecond X-ray chronoscopy*, Opt. Commun. **15** (1975), no. 2, 231–236.
- [Burek 76] Burek A.,  
*Crystals for astronomical x-ray spectroscopy*, Space Science Instrumentation **2** (1976), 53–104.
- [Chakera *et al.* 01] Chakera J.A., Raghuramaiah M., Naik P.A., Gupta P.D. et Chekovin V.K.,  
*On-line temporal characterization of an X-ray streak camera*, Optics and Laser Technology **33** (2001), 421–425.
- [Chang *et al.* 96] Chang Z., Rundquist A., Zhou J., Murnane M.M., Kapteyn H.C., Liu X., Shan B., Liu J., Niu L., Gong M. et Zhang X.,  
*Demonstration of a sub-picosecond X-ray streak camera*, Appl. Phys. Lett. **69** (1996), no. 1, 133–135.
- [Degtyareva *et al.* 03] Degtyareva V.P., Belolipetskii V.S., Bryukhnevich G.I., Ivanova S.R., Levina G.P., Makushina V.A., Polikarkina N.D., Semichastnova Z.M. et Schelev M.Y.,  
*Femtosecond streak tubes designing, manufacturing, and testing*,



- 25th International Congress on High-Speed Photography and Photonics (Cavailler C., Haddleton G.P. et Hugenschmidt M., eds.), vol. 4948, SPIE, SPIE, August 2003, pp. 281–290.
- [Degtyareva *et al.* 98] Degtyareva V.P., Monastyrsky M.A., Schelev M.Ya. et Tarasov V.A.,  
*Computer studies on dynamics of ultrashort electron packets in streak tubes and diffractometers*, Opt. Eng. **37** (1998), no. 8, 2227–2232.
- [Eagleton *et al.* 03] Eagleton R.T. et James S.F.,  
*Dynamic range measurements on streak image tubes with internal and external microchannel plate image amplification*, Rev. Sci. Instrum. **74** (2003), no. 3, 2215–2219.
- [Eidmann *et al.* 03] Eidmann K., Andiola U., Pisanía F., Hakel P., Mancini R.C., Junkel-Vives G.C., Abdallah Jr J. et Witte K.,  
*K-shell spectra from hot dense aluminum layers buried in carbon and heated by ultrashort laser pulses*, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer **81** (2003), 133–146.
- [Feurer *et al.* 01] Feuer T., Morak A., Uschmann I., Ziener Ch., Schwoerer H., Förster E. et Sauerbrey R.,  
*An incoherent sub-picosecond x-ray source for time-resolved x-ray-diffraction experiments*, Appl. Phys. B **72** (2001), 15–20.
- [Fourmaux 02] Fourmaux S.,  
*Etude de la transition de phase ultrarapide solide/liquide d'un semiconducteur par diffraction X femtoseconde*, Thèse de doctorat, LOA, 22/11/2002.
- [Gallant *et al.* 00] Gallant P., Forget P., Dorchie F., Jiang Z. et Kieffer J.C.,  
*Characterization of a subpicosecond x-ray streak camera for ultrashort laser-produced plasmas experiments*, Rev. Sci. Instrum. **71** (2000), no. 10, 3627–3633.
- [Gallant *et al.* 03] Gallant P., Kieffer J.C., Dorchie F. et Peyrusse O.,  
*Dynamics of Al thin foils irradiated by a subpicosecond high intensity laser pulse*, Phys. Plasmas **10** (2003), no. 3, 577–580.
- [Gallant *et al.* 97] Gallant P., Jiang Z., Fuchs J., Kieffer J.-C., Pepin H., Gontier D., Mens A., Blanchot N., Miquel J.-L., Pelletier J.-F. et Sutton M.,  
*Subpicosecond time-resolved x-ray spectroscopy of plasmas produced by high-intensity ultrashort laser pulses*, Applications of X Rays Generated from Lasers and Other Bright Sources (Kyrala G.A. et Gauthier J.-C., eds.), vol. 3157, SPIE, SPIE, October 1997, pp. 44–51.
- [Gallant 01] Gallant P.,  
*Développement d'une source de rayonnement X subpicoseconde et de l'instrumentation appropriée*, Thèse de doctorat, Université du Québec, 7 Juin 2001.

- [Gallant 98] ———, *Rapport de synthèse sur la caractérisation de la caméra PX1*, Tech. report, I.N.R.S., 29 Octobre 1998.
- [Geindre *et al.* 02] Geindre J.-P., Audebert P., Nagels V., Chenais-Popovics C. et Gauthier J.-C., *Spectromètre à cristal cône couplé à une caméra à balayage de fente*, Rapport d'activité, LULI, 2002.
- [Gontier *et al.* 99] Gontier D., Mens A., Millier P. et Verdelet S., *Performances dynamiques des caméras à balayage de fente*, Chocs-CEA DAM **21** (1999), 63–74.
- [Hara *et al.* 00] Hara T., Tanaka Y., Kitamura H. et Ishikawa T., *Performance of a CsI photocathode in a hard x-ray streak camera*, Rev. Sci. Instrum. **71** (2000).
- [Harmand 05] Harmand M., *Caractérisation spectrale et temporelle d'une source X obtenue par laser*, Rapport de maîtrise, Laboratoire CELIA, 2005.
- [Hauer *et al.* 85] Hauer A., Kilkenny J.D. et Landen O.L., *Toroidally curved crystal for time-resolved X-ray spectroscopy*, Rev. Sci. Instrum. **56** (1985), no. 5, 803–805.
- [Henke *et al.* 79] Henke B.L., Liesegang J. et Smith S.D., *Soft-x-ray-induced secondary-electron emission from semiconductors and insulators : Models and measurements*, Phys. Rev. B **19** (1979), no. 6, 3004–3021.
- [Jaanimagi *et al.* 88] Jaanimagi P.A., Bradley D.K., Duff J., Gregory G.G. et Richardson M.C., *Time-resolving x-ray diagnostics for ICF (invited)*, Rev. Sci. Instrum. **59** (1988), no. 8, 1854–1859.
- [Jaanimagi *et al.* 95] Jaanimagi P.A., Mens A. et Rebuffie J.C., *Photoelectron throughput in streak tubes*, SPIE **2549** (1995), no. 63, 62–71.
- [Ji *et al.* 02] Ji L., Qu J.L., Lan Z.J., Yang Q.L., Zhang H. et Niu H., *Sampling-image streak framing technique and its special streak image tube*, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A **489** (2002), 241–246.
- [Kalibjian *et al.* 74] Kalibjian R., McConaghy C.F. et Coleman L.W., *A circular streak camera tube*, Rev. Sci. Instrum. **45** (1974), no. 6, 776–778.
- [Kinoshita *et al.* 87] Kinoshita K., Ito M. et Suzuki Y., *Femtosecond streak tube*, Rev. Sci. Instrum. **58** (1987), no. 6, 932–938.
- [Kravchenko *et al.* 04] Kravchenko A.G., Litvin D.N., Lazarchuk V.P., Murugov V.M., Petrov S.I., Senik A.V. et Pryanishnikov I.G., *An ion streak camera*, Instruments and Experimental Techniques **47** (2004), no. 2, 157–162.

- [Larsson *et al.* 97] Larsson J., Chang Z., Judd E., Schuck P.J., Falcone R.W., Heilmann P.A., Padmore H.A., Kapteyn H.C., Bucksbaum P.H., Murnane M.M., Lee R.W., Machacek A., Wark J.S., Liu X. et Shan B.,  
*Ultrafast x-ray diffraction using a streak-camera detector in averaging mode*, Opt. Lett. **22** (1997), no. 13, 1012–1014.
- [Larsson *et al.* 99] Larsson J. et Sjögren A.,  
*Evaluation of laser-irradiated Ar clusters as a source for time-resolved X-ray studies*, Rev. Sci. Instrum. **70** (1999), no. 5, 2253–2256.
- [Lerche *et al.* 04] Lerche R.A., McDonald J.W., Griffith R.L., Vergel de Dios G., Andrews D.S., Huey A.W., Bell P.M., Landen O.L., Jaanimagi P.A. et Boni R.,  
*Preliminary performance measurements for a streak camera with a large-format direct-coupled charge-coupled device readout*, Rev. Sci. Instrum. **75** (2004), no. 10, 4042–4044.
- [Liu *et al.* 94] Liu H., Yao J. et Puri A.,  
*Second and third harmonic generation in BBO by femtosecond Ti:sapphire laser pulses*, Opt. Comm. **109** (1994), no. 1-2, 139–144.
- [Losovoi *et al.* 03] Losovoi V. et Ushkov I.,  
*200 femtosecond streak camera (development and dynamic measurements)*, 25th International Congress on High-Speed photography and photonics (Cavailler C., Haddleton G.P. et Hugenschmidt M., eds.), vol. 4948, SPIE, SPIE, 2003, pp. 297–304.
- [Maksimchuk *et al.* 96] Maksimchuk A., Kim M., Workman J., Korn G., Squier J., Du D., Umstadter D., Mourou G. et Bouvier M.,  
*Signal averaging x-ray streak camera with picosecond jitter*, Rev. Sci. Instrum. **67** (1996), no. 3, 697–699.
- [Martinolli *et al.* 02] Martinolli E., Koenig M., Gremillet L., Santos J.J., Amiranoff F., Baton S.D., Batani D., Scianitti F., Perelli-Cippo E., Hall T.A., Key M.H., Mackinnon A.J., Freeman R.R., Snavely R.A., King J.A., Andersen C., Hill J.M., Stephens R.B., Cowan T.E., Ng A., Ao T., Neely D. et Clarke R.J.,  
*Fast electron heating in ultra-intense laser-solid interaction using high brightness shifted ka spectroscopy*, Report, Central Laser Facility - Rutherford Appleton Laboratory, 2001-2002.
- [Martinolli *et al.* 04] Martinolli E., Koenig M., Boudenne J.M., Perelli E., Batani D. et Hall T.A.,  
*Conical crystal spectrograph for high brightness x-ray ka spectroscopy in subpicosecond laser solid interaction*, Rev. Sci. Instrum. **75** (2004), no. 6, 2024–2028.
- [Missalla *et al.* 99] Missalla T., Uschmann I., Förster E., Jenke G. et von der Linde D.,

- Monochromatic focusing of subpicosecond x-ray pulses in the keV range*, Rev. Sci. Instrum. **70** (1999), no. 2, 1288–1299.
- [Monastyrski *et al.* 99] Monastyrski M.A., Degtyareva V.P., Schelev M.Ya. et Tarasov V.A.,  
*Dynamics of electron bunches in subpicosecond streak tubes*, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. A **427** (1999), 225–229.
- [Mourou *et al.* 79] Mourou G. et Knox W.,  
*High-power switching with picosecond precision*, Appl. Phys. Lett. **35** (1979), no. 7, 492–495.
- [Murnane *et al.* 90] Murnane M.M., Kapteyn H.C. et Falcone R.W.,  
*X-ray streak camera with 2 ps response*, Appl. Phys. Lett. **56** (1990), no. 20, 1948–1950.
- [Niu *et al.* 81] Niu H. et Sibbett W.,  
*Theoretical analysis of space-charge effects in photochron streak cameras*, Rev. Sci. Instrum. **52** (1981), no. 12, 1830–1836.
- [Niu *et al.* 82] Niu H., Sibbet W. et Baggs M.R.,  
*Theoretical evaluation of the temporal and spatial resolutions of photochron streak image tubes*, Rev. Sci. Instrum. **53** (1982), no. 5, 563–569.
- [Oksenhendler 04] Oksenhendler Thomas,  
*Mesures et contrôles temporels dans le domaine des lasers ultra-brefs*, Thèse de doctorat, École Polytechnique, 20 décembre 2004.
- [Pisani *et al.* 04] Pisani F., Andiel U., Eidmann K., Witte K., Uschmann I., Morak A., Förster E. et Sauerbrey R.,  
*Influence of the density gradient on the duration of Si-K $\alpha$  pulses generated by a double femtosecond-laser pulse*, Appl. Phys. Lett. **84** (2004), no. 15, 2772–2774.
- [Qian *et al.* 02a] Qian B.-L. et Elsayed-Ali H.E.,  
*Acceleration element for femtosecond electron pulse compression*, Phys. Rev. E **65** (2002), 046502.
- [Qian *et al.* 02b] ———,  
*Electron pulse broadening due to space charge effects in a photoelectron gun for electron diffraction and streak camera systems*, J. Appl. Phys. **91** (2002), no. 1, 462–468.
- [Rebuffie 05] Rebuffie J.C.,  
*Communication privée*, 14 Avril 2005.
- [Reinke 96] Reinke B.,  
*Etude et réalisation d’une caméra à balayage de fente déclenchée à résolution temporelle proche de 500 fs*, Thèse de doctorat, Université Louis Pasteur, Septembre 1996.
- [Rousse *et al.* 01] Rousse A., Rischel C. et Gauthier J.-C.,  
*Colloquium : Femtosecond x-ray crystallography*, Rev. Mod. Phys. **73** (2001), 17–31.

- [Servol 05] Servol Marina,  
*Génération de rayonnement X par interaction laser-écoulement de poudre*, Thèse de doctorat, École Polytechnique, 3 Novembre 2005.
- [Shakya et al. 04] Shakya M.M. et Chang Z.,  
*An accumulative x-ray streak camera with 350 fs resolution*, April Ultrafast X-Ray Science, San Diego, Poster session, 2004.
- [Shakya et al. 05] ———,  
*Achieving 280 fs resolution with a streak camera by reducing the deflection dispersion*, Appl. Phys. Lett. **87** (2005), 041103.
- [Shepherd et al. 95] Shepherd R., Booth R., Price D., Bowers M., Swan D., Bonlie J., Young B., Dunn J., White B. et Stewart R.,  
*Ultrafast x-ray streak camera for use in ultrashort laser-produced plasma research*, Rev. Sci. Instrum. **66** (1995), no. 1, 719–721.
- [Shiraishi et al. 02] Shiraishi T., Mori M. et Kondo K.,  
*Estimation of the pulse width of x-ray emission from Xe clusters excited by a subpicosecond intense Ti:sapphire laser pulse*, Phys. Rev. A **65** (2002), no. 045201.
- [Siwick et al. 02] Siwick B.J., Dwyer J.R., Jordan R.E. et Dwayne-Millera R.J.,  
*Ultrafast electron optics : Propagation dynamics of femtosecond electron packets*, J. Appl. Phys. **92** (2002), no. 3, 1643–1648.
- [Stradling et al. 86] Stradling G.L., Studebaker G.K., Cavailler C., Launspach J. et Planes J.,  
*Characterization results from several commercial soft x-ray streak cameras*, Proc. SPIE **693** (1986), no. 83.
- [Young et al. 98] Young B.K.F., Osterheld A.L., Price D.F., Shepherd R., Stewart R.E., Faenov A.Ya, Magunov A.I., Pikuz T.A., Skobelev I. Yu., Flora F., Bollanti S., Di Lazzaro P., Letardi T., Grilli A., Palladino L., Reale A., Scafati A. et Reale L.,  
*High-resolution x-ray spectrometer based on spherically bent crystals for investigations of femtosecond laser plasmas*, Rev. Sci. Instrum. **69** (1998), no. 12, 4049–4053.

# Chapitre 4

## Mesure de la durée de l'émission X

### Sommaire

---

<b>4.1 Montage expérimental . . . . .</b>	<b>161</b>
4.1.1 Géométrie d'observation . . . . .	161
4.1.2 Agencement de l'expérience . . . . .	162
4.1.3 Filtres . . . . .	163
<b>4.2 Résultats expérimentaux . . . . .</b>	<b>166</b>
4.2.1 Gamme spectrale de détection . . . . .	166
4.2.2 Observation d'une émission X picoseconde . . . . .	168
4.2.3 Effet de la durée laser . . . . .	169
4.2.4 Effet de la taille des agrégats . . . . .	171
4.2.5 Effet de la polarisation laser . . . . .	171
<b>4.3 Discussion et simulation . . . . .</b>	<b>174</b>
4.3.1 Résultats expérimentaux en géométrie plane . . . . .	174
4.3.2 Modèle d'expansion hydrodynamique . . . . .	176
4.3.2.1 Hypothèses . . . . .	176
4.3.2.2 Équations de base . . . . .	177
4.3.2.3 Évolution de la densité et de la température en géométrie plane et sphérique . . . . .	179
4.3.3 Calcul de l'émission X . . . . .	181
4.3.3.1 Utilisation du code collisionnel-radiatif Transpec . . . . .	181
4.3.3.2 Cas d'un chauffage instantané . . . . .	182
4.3.3.3 Cas d'un chauffage étalé dans le temps . . . . .	183
<b>4.4 Conclusion . . . . .</b>	<b>186</b>
<b>Bibliographie Chapitre 4 . . . . .</b>	<b>187</b>

---



La première mise en œuvre de notre système de détection X ultra-rapide a consisté à mesurer la durée du rayonnement X émis lors de l'interaction entre une impulsion laser et des agrégats.

Ce chapitre s'articule comme suit. Une première partie s'attache à décrire le montage expérimental : géométrie de l'expérience, agencement des éléments et choix des filtres pour sélectionner le rayonnement X. Les résultats sont présentés dans la partie suivante. Une attention toute particulière est portée à la détermination de la gamme spectrale observée par la caméra à balayage de fente. L'étude de la durée du rayonnement est par la suite étudiée pour différentes durées d'impulsion, tailles d'agrégat et polarisations de l'impulsion. Enfin, ces résultats sont comparés avec des durées mesurées en géométrie de cible plane [Audebert *et al.* 03] [Gallant *et al.* 99]. La durée plus brève observée lors de l'irradiation laser d'agrégats est discutée et interprétée en terme de géométrie de cible, au moyen d'un modèle d'expansion hydrodynamique simple et du code collisionnel-radiatif Transpec.

## 4.1 Montage expérimental

Afin de mener à bien l'étude résolue en temps, il a fallu réaliser un montage expérimental adéquat : nous présentons ici ce montage, la géométrie de l'expérience utilisée, l'agencement mis en œuvre, ainsi que les propriétés des filtres utilisés.

### 4.1.1 Géométrie d'observation

À l'aide de l'imagerie sténopé (Cf. section 2.4.2), on peut observer (Cf. image 2.21) que le plasma a une forme tubulaire, semblable à un cigare, dont la longueur caractéristique est de l'ordre de 1 mm. Aussi, pour une configuration où la caméra à balayage de fente (C.B.F.) a son axe de visée perpendiculaire à la propagation du faisceau laser (Cf. Fig. 4.1(a)), les temps d'arrivée en un point du détecteur (zone C du schéma) du signal émis aux deux points A et B extrêmes du plasma ne sont pas les mêmes, car les temps d'émission ne sont pas les mêmes. En effet, l'interaction située au point B a lieu près de 3 ps après le point d'interaction A, le temps que l'impulsion laser parcourt la distance AB de 1 mm à une vitesse proche de  $c$ , la vitesse de la lumière dans le vide <sup>1</sup>. Aussi, la durée mesurée serait certainement biaisée par cet artefact géométrique. L'écart en temps entre les trajets AC et BC est minime, puisque le détecteur est situé à 200 mm de la zone d'interaction (écart temporel de l'ordre de 8 fs).

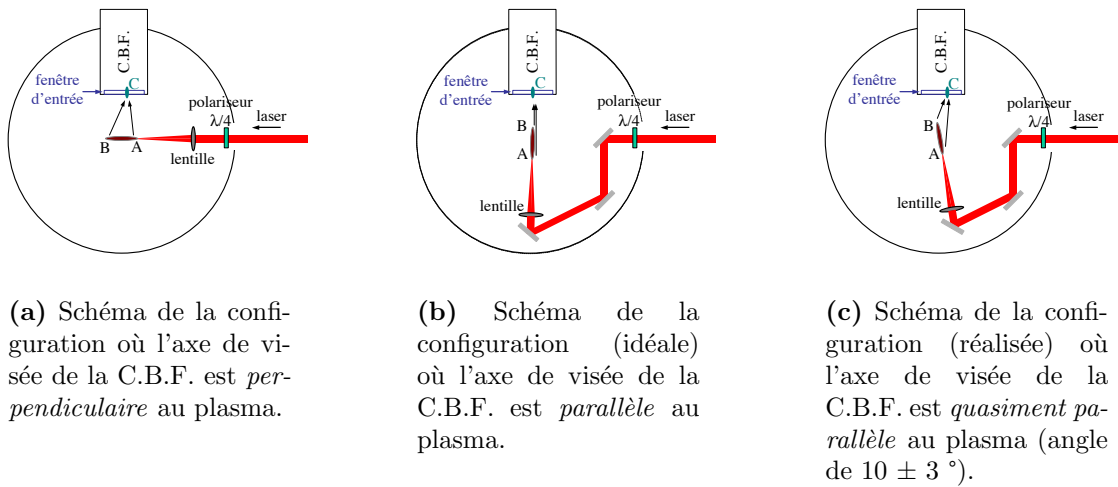
Pour remédier à cet effet, la géométrie idéale consisterait à créer le plasma parallèlement à l'axe de visée de la caméra à balayage de fente (Cf. 4.1(b)). Cependant, toute

<sup>1</sup>La vitesse de propagation des impulsions laser correspond à une vitesse de groupe  $v_g$  dans un plasma, dont l'expression peut être approximée par  $c.(1 - n_e/2.n_c)$ , avec  $n_e$  le produit de  $Z^*$  et  $N_{tot}$ , et  $n_c$  la densité critique. Dans notre cas,  $v_g$  est proche de  $c$  à quelques pourcents près



l'énergie non absorbée par les agrégats lors de l'interaction, et toute l'énergie des impulsions qui ne seraient pas entrées en interaction avec les agrégats (rappelons que la fréquence du laser est de 1 kHz, tandis que les agrégats sont créés au mieux durant 40 ms toutes les secondes, Cf. section 2.3.4), se retrouvent dirigées vers l'entrée de la caméra à balayage de fente. Le premier filtre disposé en entrée de la caméra ne peut pas évacuer toute l'énergie reçue : celui-ci servant de sas pour la pression entre l'enceinte et la caméra, tout dommage sur le filtre servant d'interface aurait pour conséquence de faire remonter la pression dans la caméra, et de ne plus prévenir les claquages dus à l'intensité des champs électrostatiques au niveau de la photocathode. Aussi, une autre géométrie a été utilisée.

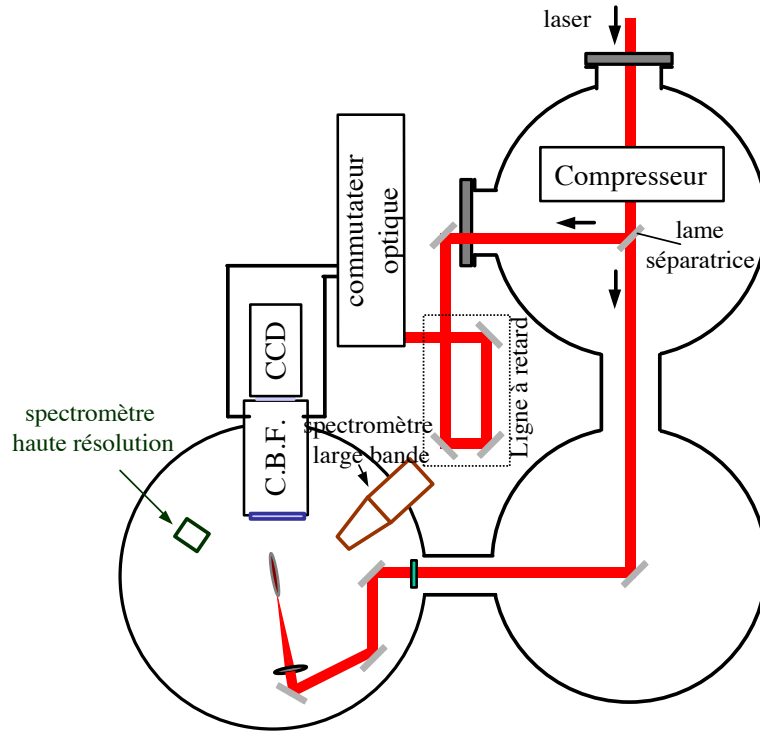
Comme on peut le voir sur la figure 4.1(c), l'axe de visée de la C.B.F. est sensiblement parallèle à l'axe de propagation du laser (incidence, du plasma créé). Pour s'assurer que le faisceau laser ne détériore pas le/les filtre(s), l'axe constitué par le plasma avait un angle de  $10 \pm 3^\circ$  par rapport à l'axe de visée de la caméra à balayage de fente. Ainsi, le délai temporel entre les rayonnements émis en A et B est de  $50 \pm 30$  fs au niveau de la photocathode, c'est-à-dire négligeable au regard de la résolution temporelle de la caméra à balayage de fente.



**Fig. 4.1:** Schémas de différentes géométries d'observation.

### 4.1.2 Agencement de l'expérience

Afin d'assurer la déclenche des rampes de tensions de la caméra à balayage de fente, une partie du faisceau laser est prélevée en sortie du compresseur au moyen d'une lame séparatrice (Cf. figure 4.2). L'écart entre les deux chemins est ajusté grâce à une ligne à retard placée sur le parcours du faisceau dédié à la déclenche de la caméra à balayage de fente, avant les commutateurs optiques. Dans l'enceinte expérimentale, nous disposons autour de la zone d'interaction du spectromètre haute résolution (Cf. section 2.4.4) ainsi que du spectromètre large bande (Cf. section 2.4.3).



**Fig. 4.2:** Schéma de l'agencement des différents diagnostics utilisés, ainsi que des trajets suivis par les bras haute et basse énergie (respectivement pour l'interaction et pour la déclenche de la caméra à balayage de fente).

### 4.1.3 Filtres

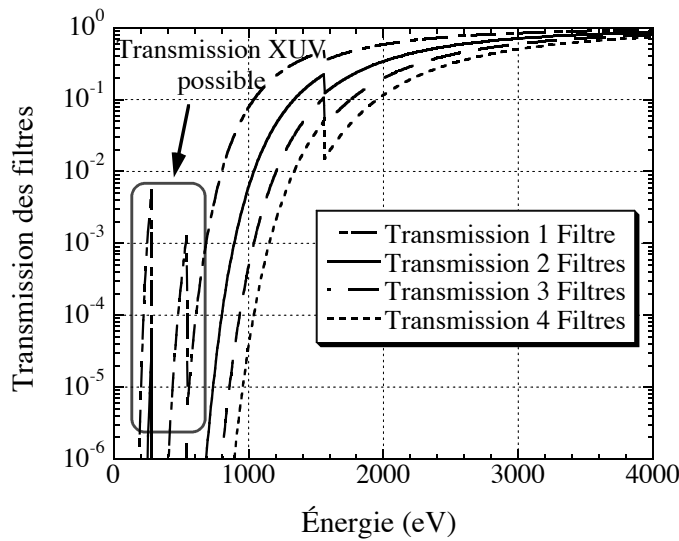
Des mesures de durée de rayonnement émis par des agrégats lors d'interaction avec des impulsions laser ont déjà été réalisées. Elles sont présentées dans le tableau 1.1 (Cf. Chap. 1) et rappelées dans le tableau 4.1. Un premier constat peut être réalisé à l'observation de ce tableau : la durée du rayonnement correspondant à la partie peu énergétique du spectre (ici, jusqu'à quelques centaines d'eV, correspondant au rayonnement "X mou") est de quelques nanosecondes. Les deux dernières lignes nous font admettre un autre constat : la partie la plus énergétique du rayonnement est à mesurer avec précaution. Notamment, il nous faut prendre des précautions pour ne pas inclure du signal XUV dans les mesures de durées d'émission du rayonnement X.

Nous pouvons estimer l'incidence de la composante basse énergie dans la mesure de la durée du rayonnement X comme suit. D'une part, le signal émis par des agrégats d'argon autour de 3 keV a été estimé à environ  $10^8$  photons par tir [Dorchies *et al.* 05], pour des conditions d'éclairement de  $1,6 \cdot 10^{16}$  W/cm<sup>2</sup> (correspondant à des impulsions de 3,0 mJ en énergie et de 500 fs en durée) sur des agrégats de taille typique de 350 Å, ce qui correspond à une efficacité de conversion de l'énergie laser de l'ordre de  $10^{-5}$ . D'autre part, il a été mis en évidence [Kondo *et al.* 02] que le signal émis par des agrégats de xénon dans la gamme 70-250 eV avait une efficacité de conversion de l'énergie laser de près de  $10^{-1}$ . Aussi, il est impératif que la transmission du/des filtre(s) appliqué(s) soit au moins supérieur d'un

Référence	Agrégat	$N_{at/agr}$	Energie	Durée estimée	Résolution
[Shiraishi <i>et al.</i> 02]	Xe	$4 \cdot 10^6$	$\sim 50$ eV	4,2 ns	100 ps
[Ditmire <i>et al.</i> 96]	Ar	$10^4$ - $10^6$	40-80 eV	quelques ns	10 ps
[Ditmire <i>et al.</i> 96]	Kr	$5 \cdot 10^5$	$\sim 250$ eV	quelques ns	10 ps
[Ditmire <i>et al.</i> 95]	Ar	$10^5$	250 eV	quelques ns	10 ps
[Namba <i>et al.</i> 06]	N <sub>2</sub>	$10^4$	400 eV	0,8 ns	400 ps
[Shiraishi <i>et al.</i> 02]	Xe	$4 \cdot 10^6$	$\sim 1000$ eV	$\leq 100$ ps	100 ps
[Larsson <i>et al.</i> 99]	Ar	$10^5$	$\sim 3000$ eV	3 ns	10 ps

**Tab. 4.1:** *Durée mesurée du rayonnement dans des gammes spectrales correspondant à du signal XUV et X. Les éclaircissements sur cible sont de l'ordre de  $10^{16}$ - $10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>.  $N_{at/agr}$  désigne le nombre d'atomes estimé par agrégat.*

facteur  $10^4$  pour la gamme X par rapport à la gamme XUV.



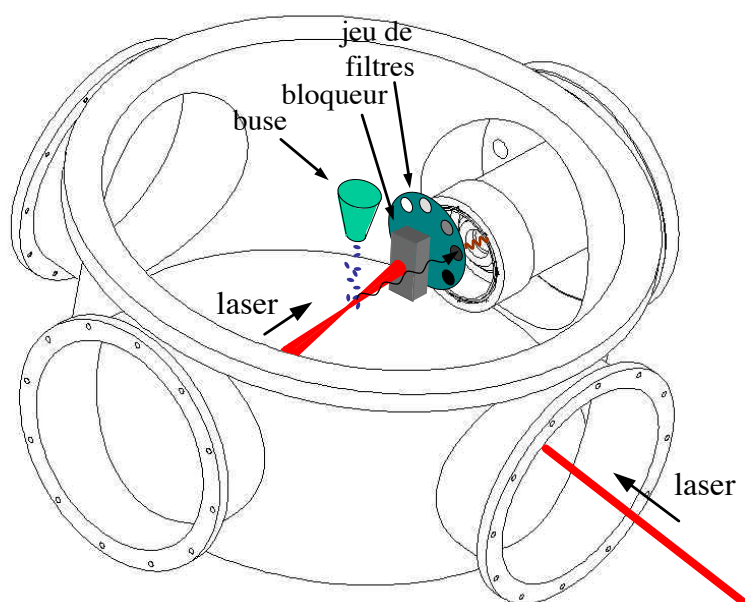
**Fig. 4.3:** *Transmission des filtres appliqués lors de l'observation du rayonnement issu du plasma. Un filtre est composé de  $6,0 \mu\text{m}$  de mylar ( $\text{C}_{10}\text{H}_8\text{O}_4$ ) et de  $0,3 \mu\text{m}$  d'aluminium.*

Afin d'observer la partie énergétique (multi-keV) du rayonnement initié par l'interaction laser-agrégat, nous avons disposé des filtres. Chaque filtre est composé d'une feuille de mylar ( $\text{C}_{10}\text{H}_8\text{O}_4$ ) aluminisé ( $0,15 \mu\text{m}$  d'aluminium sur chacune des faces). La transmission de ces composés est bien connue, et nous pouvons trouver en ligne les valeurs de la transmission en fonction de l'énergie du photon incident <sup>2</sup>. Nous pouvons voir en figure 4.3 la valeur de la transmission pour 1, 2, 3 et 4 filtres. Si pour un filtre, la transmission peut atteindre 10 % pour le signal dont l'énergie est inférieure à 1 keV, la transmission

<sup>2</sup>[http://www.cxro.lbl.gov/optical\\_constants/filter2.html](http://www.cxro.lbl.gov/optical_constants/filter2.html)

chute à moins de 1 % pour ce même signal avec l'application de deux filtres. Ainsi, l'application successive de plusieurs filtres nous prémunit bien de la composante basse énergie de l'émission.

La figure 4.4 détaille le montage des filtres. Le laser entre dans l'enceinte par le bas à droite de la figure. Les montures des miroirs de réflexion sont cachées par l'enceinte. Le faisceau laser est focalisé sur le jet d'agrégats, en direction de la caméra à balayage de fente. Le système de double vide, le système d'apport de gaz à la buse ainsi que l'entrée de la caméra à balayage de fente ne sont pas présentés pour plus de lisibilité du schéma. Le faisceau laser est arrêté par un bloqueur de faisceau, tandis que le rayonnement X en entrée de la caméra à balayage de fente traverse un des filtres disposés circulairement sur un disque motorisé.



**Fig. 4.4:** Schéma détaillant le montage dédié aux filtres.

### Normalisation

Afin de s'assurer de la stabilité du rayonnement issu du plasma tir après tir (ou plutôt séquence de tirs après séquence de tirs), nous disposons du spectromètre de haute résolution. Les résultats de la C.B.F. présentés dans la section suivante sont donc normalisés aux mesures de cet instrument, qui a déjà été calibré en absolu par ailleurs (Cf. section 2.4.4).

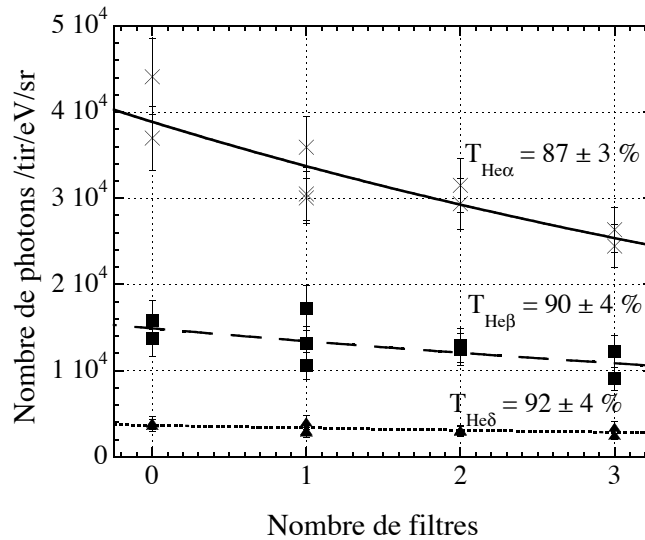
La méthode de l'expérience étant présentée, la partie suivante s'attache à présenter les résultats obtenus.

## 4.2 Résultats expérimentaux

Dans un premier temps, nous nous sommes attachés à caractériser la gamme spectrale que nous observons. Par la suite, nous avons mesuré la durée de l'émission X et étudié son comportement en fonction de différents paramètres, tels que : la durée de l'impulsion laser, la taille des agrégats, ainsi que la polarisation de l'impulsion laser.

### 4.2.1 Gamme spectrale de détection

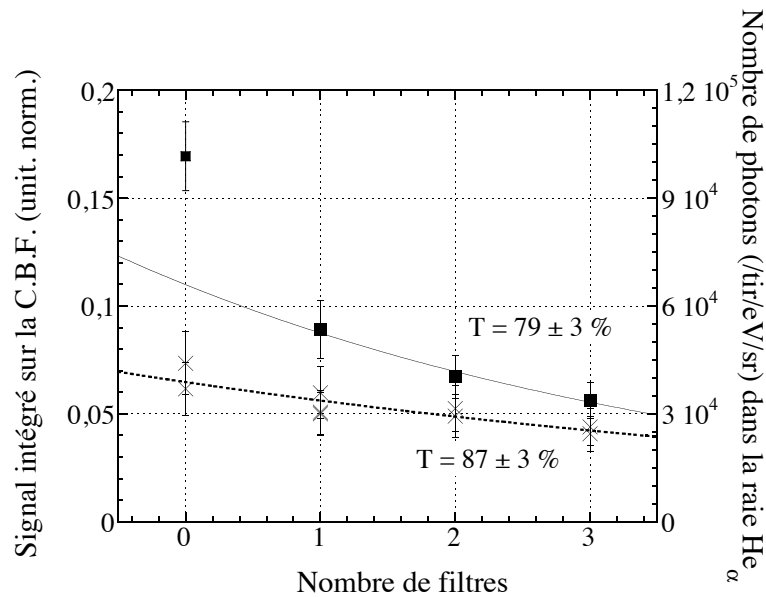
On s'est assuré que les filtres ont bien les propriétés de transmission obtenues à partir des tables. En figure 4.5 est présenté le nombre de photons produits lors de l'interaction tel que mesuré avec le spectromètre de haute résolution. En appliquant successivement 1, 2 et 3 filtres supplémentaires, on obtient la transmission effective des filtres, à différentes énergies. Les énergies de référence sont celles correspondant aux raies  $\text{He}_\alpha$ ,  $\text{He}_\beta$  ainsi que  $\text{He}_\delta$  (aux énergies 3,138 keV, 3,683 keV et 3,965 keV respectivement). Nous trouvons à ces énergies des transmissions de  $87 \pm 3 \%$ ,  $90 \pm 4 \%$  et  $92 \pm 4 \%$ , ce qui est en accord avec les transmissions obtenues à l'aide de tables (Cf. Fig. 4.3 ci-dessus), qui indiquent des transmissions de 86 %, 91 % et 93 % respectivement.



**Fig. 4.5:** Signal mesuré par le spectromètre haute résolution, en fonction du nombre de filtres supplémentaires appliqués. Différentes énergies ont été considérées, correspondant aux raies  $\text{He}_\alpha$  (3,14 keV) (en trait plein),  $\text{He}_\beta$  (3,68 keV) (en tirets) et  $\text{He}_\delta$  (3,96 keV) (en pointillés). Les mesures ont été réalisées avec 1,6 mJ sur cible, une durée d'impulsion de  $470 \pm 70$  fs, et une pression amont de 40 bars.

Afin de vérifier que nous observions effectivement la partie énergétique du spectre

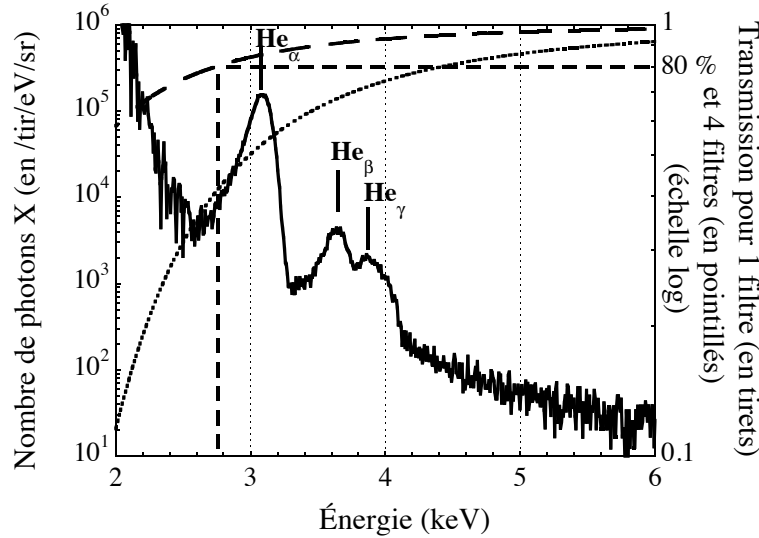
seulement, et que les filtres coupent bien la contribution correspondant à la gamme des UV, nous avons réalisé la même opération devant la caméra à balayage de fente : nous avons mesuré le signal avec un filtre (filtre servant à isoler les deux systèmes de vide), puis en appliquant 1, 2 et 3 filtres additionnels. Ce résultat est présenté en figure 4.6. Les points de mesure concernant la caméra à balayage de fente sont représentés sous forme de carrés. On peut voir sur la figure que le comportement de l'intensité suit une loi exponentielle à partir du moment où on applique au moins un filtre supplémentaire. Cela laisse supposer qu'il est nécessaire de disposer d'au moins deux filtres au total pour être assuré de ne détecter que des X (rayonnement énergétique) et d'avoir supprimé la composante UV du signal. Cela dit, la transmission des filtres déduite de la décroissance exponentielle observée n'est que de  $79 \pm 3 \%$ , valeur inférieure à la transmission mesurée pour la raie  $\text{He}_\alpha$ .



**Fig. 4.6:** Échelle de gauche : signal mesuré sur la caméra à balayage de fente en fonction du nombre de filtres (données en carrés et courbe d'ajustement en trait plein). Échelle de droite : pour comparaison est indiqué le signal mesuré par le spectromètre haute résolution en appliquant un nombre différents de filtres (données en croix et courbe d'ajustement en pointillés).

Pour fixer les idées sur la gamme spectrale observée, on peut mettre en regard ces résultats avec une mesure de spectre sur une gamme spectrale allant de 2 à 6 keV, comme présenté en figure 4.7, obtenu avec un spectromètre large bande (détaillé en section 2.4.3). Sur cette figure est représenté d'une part le spectre large bande, et d'autre part la transmission pour 1 et 4 filtres (6  $\mu\text{m}$  mylar-0,3  $\mu\text{m}$  Al, Cf. ci-dessus). Il est opportun de rappeler ici que la partie basse énergie fournie par le spectromètre large bande est à considérer avec précaution. En effet, lors de la déconvolution des données, le spectre est très sensible aux variations de la transmission des filtres utilisés avec ce diagnostic. La transmission de ces filtres variant très rapidement dans cette gamme énergétique, l'erreur possible est

très grande sur le niveau de l'intensité du signal que l'on peut déduire. Cependant, nous pouvons avoir une bonne idée de la gamme spectrale détectée. On peut voir sur la figure présentée en figure 4.7 que la transmission moyenne observée de 79 % est centrée sur 2,8 keV. Le spectre n'étant pas établi de manière certaine en-deçà de 2,5 keV, nous pouvons simplement abonder dans le sens suivant : la composante de plus basse énergie (inférieure à  $\sim 2$  keV) est effectivement coupée par l'application des filtres.



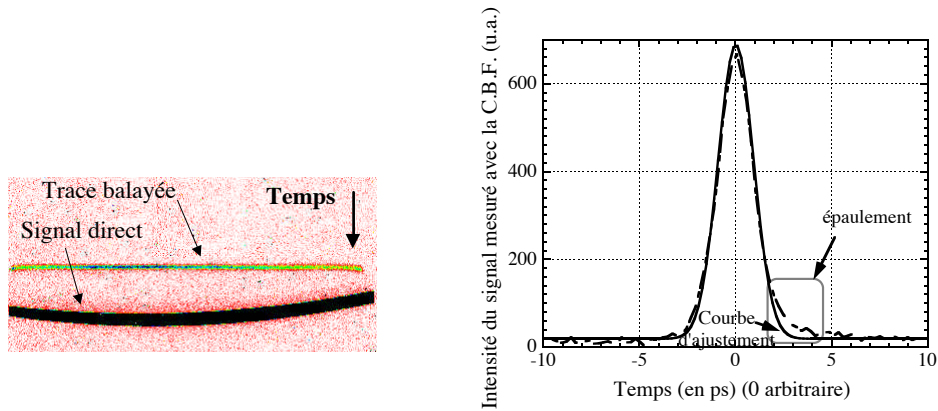
**Fig. 4.7:** Échelle de gauche : Spectre obtenu par le spectromètre X "Matrix" dans la gamme énergétique de 2 à 6 keV. La composante basse énergie du spectre (inférieure à 2,5 keV) doit être considérée avec précaution, le signal obtenu après analyse étant très sensible à la transmission des filtres qui varie très rapidement dans cette zone. Échelle de droite : Transmission pour 4 filtres (1 filtre étant composé de  $6,0 \mu\text{m}$  de mylar et  $0,3 \mu\text{m}$  d'Al) (en tirets).

Après nous être assuré que nous observions effectivement avec la caméra C.B.F. la partie énergétique du rayonnement ( $\geq 2$  keV), nous pouvons présenter dans les sections suivantes l'influence de différents paramètres, tels que la durée des impulsions laser, la taille des agrégats, ou bien encore la polarisation de l'impulsion laser, sur la durée de l'émission X.

#### 4.2.2 Observation d'une émission X picoseconde

Un exemple de mesure réalisée avec la caméra à balayage de fente (C.B.F.) est indiqué sur la figure 4.8(a) : on peut y voir le comportement du rayonnement X en fonction du temps pour une impulsion laser de 1,6 mJ sur cible et 700 fs FWHM de durée irradiant des agrégats obtenus avec 40 bars de pression amont.

Cette mesure démontre pour la première fois que le rayonnement X ( $\geq 2$  keV) a une durée d'émission très brève, limitée par la résolution temporelle de l'instrument : 2 ps à mi-hauteur. Le signal est constitué d'un pic gaussien (fonction de réponse de l'appareil) et d'un léger épaulement aux temps longs. L'analyse indique que cet épaulement d'une durée de l'ordre de quelques picosecondes contient de l'ordre de 5 % du signal détecté.



(a) Image obtenue après correction numérique. On peut distinguer le signal mesuré (trace balayée) des photons X impactant directement l'écran de phosphore (signal direct).

(b) Evolution du signal mesuré en fonction du temps. En tirets : mesure. En trait plein : courbe d'ajustement gaussienne (correspondant à la fonction de réponse de la caméra à balayage de fente).

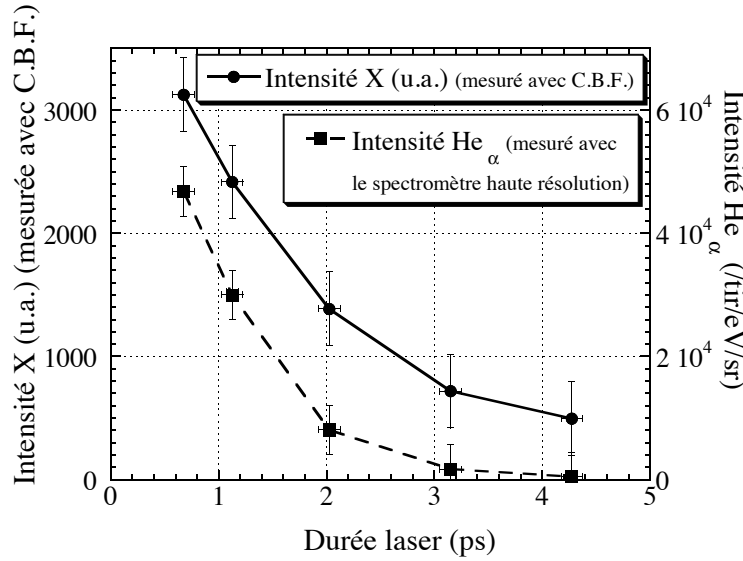
**Fig. 4.8:** Image d'une trace balayée par la caméra à balayage de fente, et coupe correspondante. Ces données correspondent à des conditions expérimentales de 1,6 mJ sur cible et 700 fs FWHM de durée laser, en polarisation linéaire, et une pression amont de 40 bars.

### 4.2.3 Effet de la durée laser

La durée de l'émission X a été mesurée avec des impulsions laser de différentes durées. Deux effets sont observés. D'une part, l'intensité du signal varie avec la durée laser. D'autre part, la durée mesurée augmente avec la durée laser.

La variation de l'intensité en fonction de la durée de l'impulsion laser est représentée en figure 4.9. Le signal intégré en temps est indiqué à la fois à partir des mesures fournies par la caméra à balayage de fente (représenté en croix et trait plein, avec l'échelle de gauche), et par le spectromètre de haute résolution pour le signal correspondant à la raie  $\text{He}_\alpha$  (représenté en carrés et tirets, avec l'échelle de droite). Ceci est cohérent avec des mesures précédentes (voir par exemple la figure 1.7 au chapitre 1). Nous avons un optimum en émission (raie  $\text{He}_\alpha$ ) à  $\sim 400$  fs, pour une condition de pression amont de 40 bars. Nous retrouvons également une diminution continue de l'émission à partir de 600 fs.



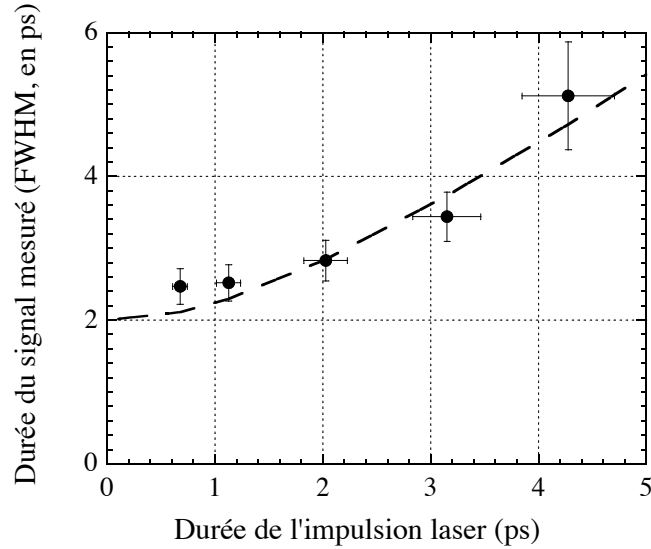


**Fig. 4.9:** *Intensité X intégrée en temps, avec 1,6 mJ sur cible en polarisation linéaire pour les impulsions laser, et une pression amont de 40 bars pour les agrégats. Échelle de gauche : données obtenues avec la caméra à balayage de fente (données en ronds et trait plein). Échelle de droite : données obtenues avec le spectromètre haute résolution (données en carrés et tirets).*

La durée du signal est représentée sur la figure 4.10 en fonction de la durée laser. Pour de faibles durées laser, la durée de l'émission X est limitée par la résolution de la caméra à balayage de fente (de l'ordre de 2 ps). Pour des durées laser plus élevées, on observe une équivalence asymptotique entre durée laser et durée du rayonnement X. Les points expérimentaux sont, de ce fait, très bien reproduits par le produit de convolution de la durée laser avec la résolution temporelle de la caméra à balayage de fente.

Nous pouvons aborder ce résultat selon deux points de vue :

- D'une part, en considérant cela comme un phénomène physique : le rayonnement X émis par les agrégats a une durée de plus en plus longue lorsque l'on irradie avec des impulsions laser de plus en plus longues. Nos observations seraient alors compatibles avec une durée d'émission X très courte, de l'ordre de la durée de l'impulsion laser. Elles suggéreraient une émission X sub-picoseconde à l'optimum de l'émission X obtenu pour une durée laser de quelques centaines de femtosecondes.
- D'autre part, on peut moduler les conclusions que nous pouvons obtenir de ce résultat expérimental en soulignant les conditions dans lesquelles il a été obtenu. L'impulsion laser servant de déclenche pour la caméra à balayage de fente a la même durée temporelle que l'impulsion servant à l'interaction : les deux faisceaux sont séparés sous vide après le compresseur (Cf. Fig. 4.2). Nous ne connaissons pas exactement le comportement des commutateurs optiques lorsque les impulsions servant de déclenche ont des durées plus longues, n'ayant pas de caractérisation spécifique



**Fig. 4.10:** Évolution de la durée du rayonnement X en fonction de la durée de l'impulsion laser. Les conditions expérimentales correspondent à des impulsions laser de 1,6 mJ sur cible, en polarisation linéaire, avec une pression amont de 40 bars. En croix et trait plein : données expérimentales. En tirets : résultat du produit de convolution entre la durée des impulsions laser et une résolution instrumentale de 2 ps.

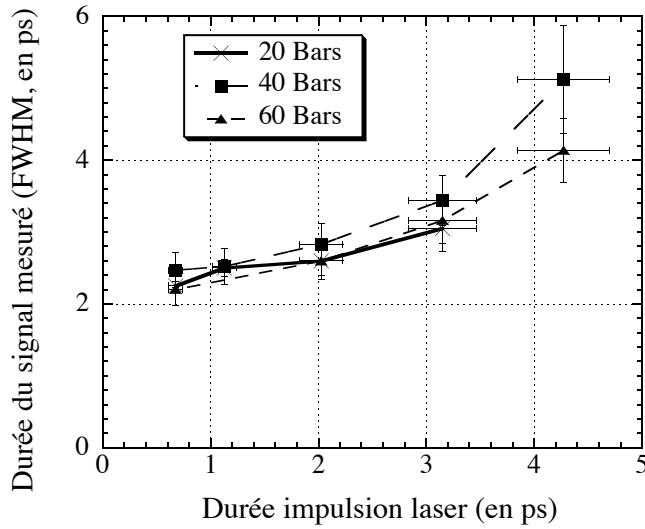
préalable, avec un faisceau triplé en fréquence par exemple.

#### 4.2.4 Effet de la taille des agrégats

Nous avons fait varier la taille moyenne des agrégats en ajustant la pression en amont de la buse (Cf. section 2.3). Les mesures de durée d'émission X en fonction de la durée laser sont reportées sur la figure 4.11, regroupant les données obtenues à 20, 40 et 60 bars. Pour mémoire, une pression de 20, 40 et 60 bars correspond à un rayon moyen de  $183 \pm 25$  Å,  $275 \pm 40$  Å et  $348 \pm 50$  Å respectivement. La polarisation du laser est linéaire. On retrouve un comportement similaire à celui présenté en figure 4.10. Ces résultats indiquent qu'il n'y a pas (dans la gamme étudiée) d'incidence majeure de la taille des agrégats sur le comportement temporel de l'émission X.

#### 4.2.5 Effet de la polarisation laser

Afin de faire varier la polarisation du faisceau incident, nous avons intercalé une lame quart d'onde d'ordre 0 sur la propagation du faisceau. Les résultats obtenus avec la polarisation circulaire sont présentés en figure 4.12. Nous pouvons voir sur cette figure, en

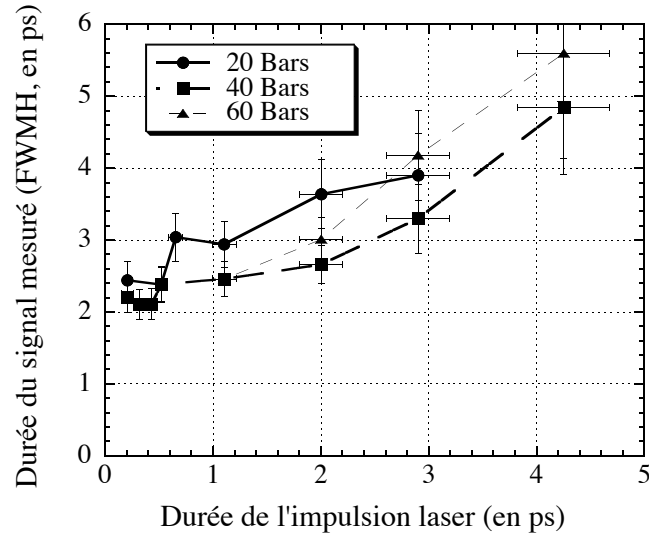


**Fig. 4.11:** *Évolution de la durée du rayonnement X en fonction de la durée de l'impulsion laser pour différentes pressions. Les conditions expérimentales correspondent à des impulsions laser de 1,6 mJ sur cible, en polarisation linéaire.*

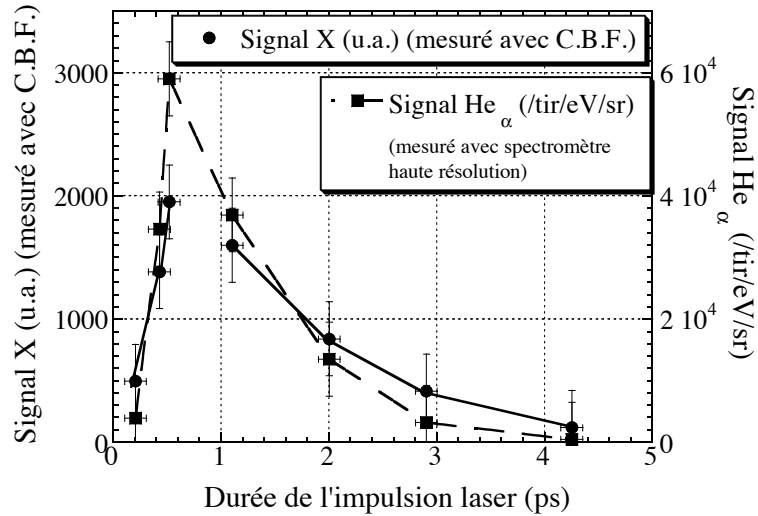
comparaison avec la figure 4.11 précédente qu'il n'y a pas de différence significative sur le comportement de la durée du rayonnement X émis par les agrégats lorsque l'on fait ainsi varier la polarisation de l'onde laser, ce pour différentes durées d'impulsion laser.

La figure 4.13 présente la variation de l'intensité X mesurée avec la caméra à balayage de fente, intégrée en temps, ainsi que le signal correspondant à la raie  $\text{He}_\alpha$  mesuré avec le spectromètre de haute résolution, pour différentes pression en fonction de la durée d'impulsion. On retrouve l'allure présentée en figure 4.9, obtenu avec une polarisation linéaire.

Cette indépendance avec la polarisation linéaire ou circulaire avait déjà été observée lors de mesures de spectres X intégrés en temps, préalablement obtenues avec le spectromètre haute résolution [Caillaud 04].



**Fig. 4.12:** Évolution de la durée du rayonnement  $X$  en fonction de la durée de l'impulsion laser pour différentes pressions, avec une polarisation circulaire du faisceau incident. L'énergie sur cible est de 1,6 mJ.



**Fig. 4.13:** Intensité  $X$  intégrée en temps, avec 1,6 mJ sur cible en polarisation circulaire pour les impulsions laser, et une pression amont de 40 bars pour les agrégats. Échelle de gauche : données obtenues avec la caméra à balayage de fente. Échelle de droite : données obtenues avec le spectromètre haute résolution.

### 4.3 Discussion et simulation

Le principal résultat de l'expérience présentée ici est la démonstration de la brièveté de l'émission des agrégats dans la gamme multi-keV : inférieur à 2 ps, qui est la limite de résolution de la caméra à balayage de fente. Nous discutons ce résultat en termes de durées d'expansion hydrodynamique et de refroidissement et en considérant que le rayonnement X est produit tant que le plasma est chaud et dense.

Il est intéressant de comparer le résultat présenté ici avec des expériences réalisées selon différentes configurations. Nous proposons pour cela de présenter dans la section suivante (Cf. section 4.3.1) des résultats obtenus lors de l'interaction d'impulsions laser focalisées et une cible solide, sous forme de feuille. Un trait essentiel nous permettant de rapprocher ce cas de celui des agrégats est que la longueur caractéristique de la cible selon l'axe de propagation est inférieur à la longueur du gradient de température. La température est donc homogène. La différence essentielle réside dans la géométrie différente des cibles : l'expansion d'une feuille se produit selon une dimension (géométrie plane), tandis que l'expansion des agrégats se réalise selon trois dimensions (géométrie sphérique).

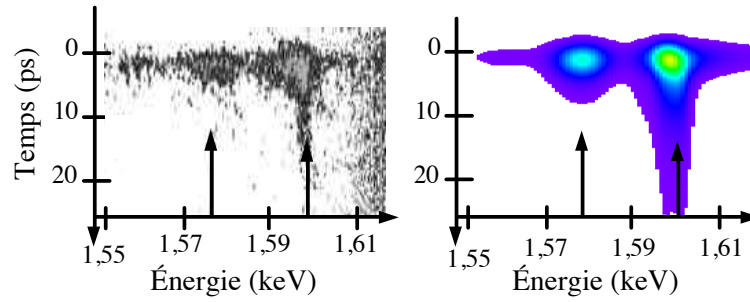
Nous proposons dans la section suivante (Cf. section 4.3.2) un modèle très simple d'expansion hydrodynamique, nous permettant d'appréhender ces effets géométriques. Les hypothèses choisies permettent d'obtenir une évolution temporelle du rayon, de la densité et de la température électroniques d'un agrégat en fonction du temps.

Les paramètres hydrodynamiques ainsi obtenus sont injectés dans un code collisionnel-radiatif : le code TRANSPEC qui permet d'obtenir le comportement temporel du rayonnement X émis. Les différentes géométries sont comparées (plane et sphérique). Les résultats obtenus par ces calculs sont présentés à la dernière section de ce chapitre (Cf. section 4.3.3).

#### 4.3.1 Résultats expérimentaux en géométrie plane

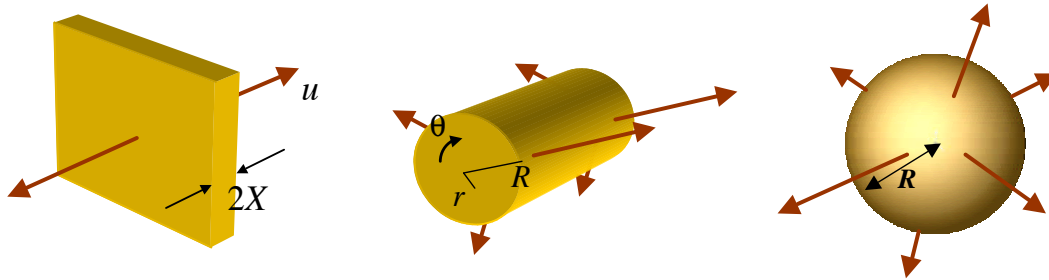
Différents groupes se sont intéressés au comportement temporel de l'émission produite dans le domaine des X lors de l'interaction entre une impulsion laser intense avec une feuille [Gallant *et al.* 99] [Audebert *et al.* 03]. Nous présentons en figure 4.14 une partie des résultats obtenus par P. Audebert et ses collaborateurs auprès du laboratoire LULI. Ce résultat a été obtenu avec une impulsion laser de 300 fs FWHM focalisée sur une feuille de 800 Å d'aluminium pour atteindre une intensité maximale de près de  $2 \times 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>. La figure de gauche présente le résultat expérimental. La gamme spectrale étudiée correspond à la raie He<sub>α</sub> de l'aluminium et à ses satellites. La figure de droite présente les résultats obtenus par une simulation (incluant un code hydrodynamique et le code collisionnel-radiatif Transpec). Ils sont en très bon accord avec l'observation. Pour ce qui nous concerne, le résultat important de cette expérience est que l'émission X, correspondant à l'He<sub>α</sub> et ses satellites, est encore observée plus d'une dizaine de picoseconde après le début de l'interaction.

On peut avancer un argument de géométrie pour rendre compte de la différence des



**Fig. 4.14:** *Spectre résolu en temps d'une feuille (800 Å d'épaisseur) d'aluminium irradiée par une impulsion laser de 300 fs, avec une intensité sur cible de quelques  $10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>. À gauche : spectre expérimental. À droite : spectre obtenu par simulation numérique. Pour chacun des deux spectres, la flèche de droite indique la raie  $\text{He}_\alpha$  et la flèche de gauche indique les raies satellite lithiunmoïdes.*

durées d'émission observées avec des cibles sous forme de feuille et d'agrégats. Plus généralement, on peut distinguer trois géométries de cible représentées dans la figure 4.15 : cibles plane, cylindrique et sphérique. Les notations utilisées pour décrire leur expansion sont aussi indiquées. Une cible plane se détend dans la direction perpendiculaire au plan (axe  $u$  sur la figure). Une cible cylindrique se détend radialement (augmentation de son rayon  $R$ ). Une cible sphérique se détend aussi radialement mais l'augmentation de son rayon  $R$  se traduit par une augmentation encore plus importante de son volume.



**Fig. 4.15:** *Cibles de différentes géométries : plane (épaisseur  $2X$ ), cylindrique (rayon  $R$ ) et sphérique (rayon  $R$ ).*

A priori, on s'attend à ce que l'évolution de la densité et de la température soit sensible à la géométrie de la cible : une expansion sphérique fera chuter la densité beaucoup plus rapidement qu'une expansion plane, ainsi que la température. Aussi, en considérant que le rayonnement X est réalisé pour des conditions de plasma correspondant à un état *suffisamment* chaud et dense, on s'attend à une émission X qui décroît beaucoup plus vite en géométrie sphérique.

Nous nous proposons dans les sections suivantes d'aborder cet argument de géométrie par une simulation numérique. La section suivante s'attache à décrire la première étape de la simulation : un modèle d'expansion hydrodynamique simple.

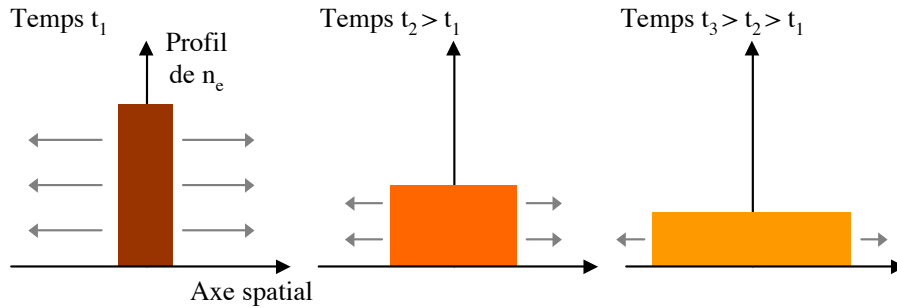
### 4.3.2 Modèle d'expansion hydrodynamique

Nous présentons dans cette partie le modèle d'expansion hydrodynamique très simple que nous avons élaboré pour obtenir le comportement de la densité et de la température en fonction du temps. Nous présentons d'abord les hypothèses qui ont servi au modèle. Nous établirons alors les équations qui gouvernent les grandeurs densité électronique  $n_e$  et température électronique  $T_e$ . La dernière section présentera l'évolution en fonction du temps de ces grandeurs pour les géométries planes et sphériques.

#### 4.3.2.1 Hypothèses

Le modèle monodimensionnel rendant compte de l'expansion hydrodynamique comporte plusieurs hypothèses, qui sont :

- *Profil auto-semblable* : Tout d'abord, nous considérons que la densité électronique  $n_e$  et la température électronique  $T_e$  sont homogènes dans l'élément spatial considéré (feuille, cylindre ou sphère selon la géométrie). Il n'y a donc pas de gradients : les profils sont dit "carrés". De plus, leur forme est conservée lors de l'évolution (profils auto-semblables). On peut voir sur la figure 4.16 à trois instants successifs la conservation de cette forme.



**Fig. 4.16:** Profil auto-semblable de la densité électronique  $n_e$  : la forme se conserve lors de la détente (ici, un profil carré). L'aire se conserve, et exprime la conservation du nombre total d'électrons libres.

- *Conservation de l'énergie* : La cible se détend sous l'effet d'une force de pression. Pour les gros agrégats qui nous concernent, on ne considère que la pression cinétique (Cf. section 1.4.1.5), et plus exactement sa seule composante électronique :  $P_{cinétique} = n_e k_B T_e$ , où  $k_B$  est la constante de Boltzmann. En effet, les temps caractéristiques étant très courts, le transfert de l'énergie thermique des électrons aux ions n'a pas le temps de s'établir.
- *Détente adiabatique* : Il n'y a pas de perte d'énergie vers l'environnement, à contrario des cibles solides par exemple (pour lesquelles il y a des pertes de chaleur par conduction thermique dans le volume froid en arrière de l'interaction). Nous considérons que l'énergie apportée par le laser est déposée de manière instantanée à l'instant initial.

- *Degré d'ionisation constant* : Nous considérons également qu'il y a peu ou pas de recombinaison durant le temps considéré, ce qui nous assure de la conservation du degré d'ionisation  $Z$ . On a ainsi  $\int n_e dV = C^{ste}$ .

#### 4.3.2.2 Équations de base

Ces hypothèses nous permettent maintenant de bâtir un système d'équations, dont la résolution nous apportera le comportement temporel du rayon et de la température électronique. Nous présentons le cas d'une cible de géométrie sphérique avant de proposer une formulation générale pour les autres géométries.

Nous sommes amenés à considérer le système simple d'équations suivantes, utilisant respectivement l'hypothèse de conservation de l'énergie, d'adiabaticité et de pression cinétique dominée par la composante électronique :

$$\begin{cases} PdV &= dE_{cin} \\ PV^\gamma &= C^{ste} \\ P &= n_e k_B T_e \end{cases} \quad (4.1)$$

avec  $P$  la pression,  $E_{cin}$  l'énergie cinétique et  $V$  le volume de la cible,  $\gamma$  la constante d'adiabaticité (valant  $5/3$  pour les électrons qui se trouvent dans un état à trois degrés de liberté),  $n_e$  la densité électronique,  $k_B$  la constante de Boltzmann, et  $T_e$  la température électronique.

Pour calculer l'évolution de la sphère au cours du temps, nous cherchons à obtenir une expression explicite de son rayon  $R$  et de sa température électronique  $T_e$  pour tout instant  $t$ .

On peut calculer l'énergie cinétique  $E_{cin}$  selon :

$$E_{cin} = \int \int \int_V \frac{1}{2} n_i m_i v^2 dV \quad (4.2)$$

avec  $m_i$  et  $n_i$  la masse et la densité d'ions, en considérant que  $E_{cin}$  est dominée par les ions beaucoup plus massifs.

La vitesse  $v$  au rayon  $r$  à l'intérieur d'une sphère s'écrit :  $v(r) = r.v(R)/R$ , avec  $v(R) = dR/dt$ , en considérant l'hypothèse de profil auto-semblable.



L'énergie cinétique devient :

$$\begin{aligned} E_{cin} &= \int_0^R \frac{1}{2} n_i m_i \frac{v^2(R)}{R^2} r^2 4\pi r^2 dr \\ &= \frac{2n_i m_i}{5} \pi R^3 v^2(R) \end{aligned} \quad (4.3)$$

Cette expression, avec la première équation de 4.1, donne :

$$\begin{cases} P \frac{dV}{dt} &= n_e k_B T_e \times 4\pi R^2 \frac{dR}{dt} \\ &= \frac{3n_i m_i}{10} \times \frac{4}{3} \pi R^3 \times 2 \frac{dR}{dt} \frac{d^2 R}{dt^2} = \frac{dE_{cin}}{dt} \end{cases} \quad (4.4)$$

D'où :

$$\boxed{\frac{d^2 R}{dt^2} = \frac{5c_s^2}{R}} \quad (4.5)$$

avec  $c_s = \sqrt{\frac{Zk_B T_e}{m_i}}$  la vitesse acoustique ionique, et en utilisant  $n_e = Z.n_i$ .

L'hypothèse d'adiabaticité (deuxième équation de 4.1) peut aussi s'exprimer sous la forme dérivée suivante :

$$\frac{dn_e}{n_e} + \frac{dT_e}{T_e} + \gamma \frac{dV}{V} = 0 \quad (4.6)$$

La conservation du nombre d'électrons (à  $Z = C^{ste}$ ) nous donne  $dn_e/n_e = -dV/V$ , et l'équation précédente devient :

$$\boxed{\frac{T_e}{T_{e0}} = \left( \frac{R_0}{R} \right)^2} \quad (4.7)$$

où  $T_{e0}$  et  $R_0$  sont les valeurs initiales à  $t = 0$  de la température électronique et du rayon, et  $\gamma = 5/3$ .

Une expression plus générale pour les différentes géométries peut être obtenue sous la forme compacte suivante :

$$\begin{cases} \frac{d^2 R}{dt^2} &= (2 + D) \frac{c_s^2}{R} \\ \frac{T_e}{T_{e0}} &= \left( \frac{R_0}{R} \right)^{2D/3} \end{cases} \quad (4.8)$$

où  $D$  représente la géométrie considérée ( $D = 1, 2$  ou  $3$  selon une géométrie plane, cylindrique ou sphérique), et  $R_0$  est le rayon initial. Dans le cas d'une cible plane,  $R_0$  devient  $X_0$  (demie-épaisseur).  $c_s$  est reliée à la vitesse acoustique ionique initiale  $c_{s0} = \sqrt{\frac{Zk_B T_{e0}}{m_i}}$  par  $c_s^2 = c_{s0}^2 \left(\frac{R_0}{R}\right)^{2D/3}$ .

En exprimant le temps  $t$ , le rayon  $R$  et la température électronique  $T_e$  selon leurs expressions normalisées suivantes :

$$\begin{cases} \tau &= t.c_0/R_0 \\ \rho &= R/R_0 \\ \theta &= T_e/T_{e0} \end{cases} \quad (4.9)$$

nous obtenons le système d'équations suivant :

$$\begin{cases} \frac{d^2 \rho}{d\tau^2} &= \frac{(2+D)}{\rho} \cdot \theta \\ \frac{d\theta}{d\tau} &= D(1-\gamma) \frac{\theta}{\rho} \frac{d\rho}{d\tau} \end{cases} \quad (4.10)$$

Ces deux équations nous permettent d'obtenir l'évolution au cours du temps de la densité au sein de la cible, ainsi que de la température électronique. La section suivante présente sous forme graphique l'évolution de ces deux variables.

#### 4.3.2.3 Évolution de la densité et de la température en géométrie plane et sphérique

Le système des deux équations 4.10 est résolu numériquement par une méthode de type itérative. En discrétisant le temps, la variation  $dx$  d'une variable  $x$  peut s'évaluer au temps  $t_i$  ( $i$  étant l'indice de discrétisation) par  $dx \simeq (x_{i+1} - x_{i-1})/2$ , et la variable elle-même peut être évaluée par  $x_i \simeq (x_{i+1} + x_{i-1})/2$ , où  $i$  est l'index du temps considéré.

La première expression de 4.10 peut s'évaluer sous forme discrète à l'indice  $i$  selon l'expression suivante :

$$\left(\frac{d^2 \rho}{d\tau^2}\right)_i = \frac{(\frac{d\rho}{d\tau})_{i+1/2} - (\frac{d\rho}{d\tau})_{i-1/2}}{\tau_{i+1/2} - \tau_{i-1/2}}$$

Avec une grille régulière en temps, l'expression précédente devient :

$$\left(\frac{d^2 \rho}{d\tau^2}\right)_i = \frac{\frac{\rho_{i+1} - \rho_i}{\tau_{i+1} - \tau_i} - \frac{\rho_i - \rho_{i-1}}{\tau_i - \tau_{i-1}}}{\tau_{i+1/2} - \tau_{i-1/2}} = \frac{\rho_{i+1} + \rho_{i-1} - 2\rho_i}{d\tau^2}$$

Le système d'équation 4.10 devient ainsi :

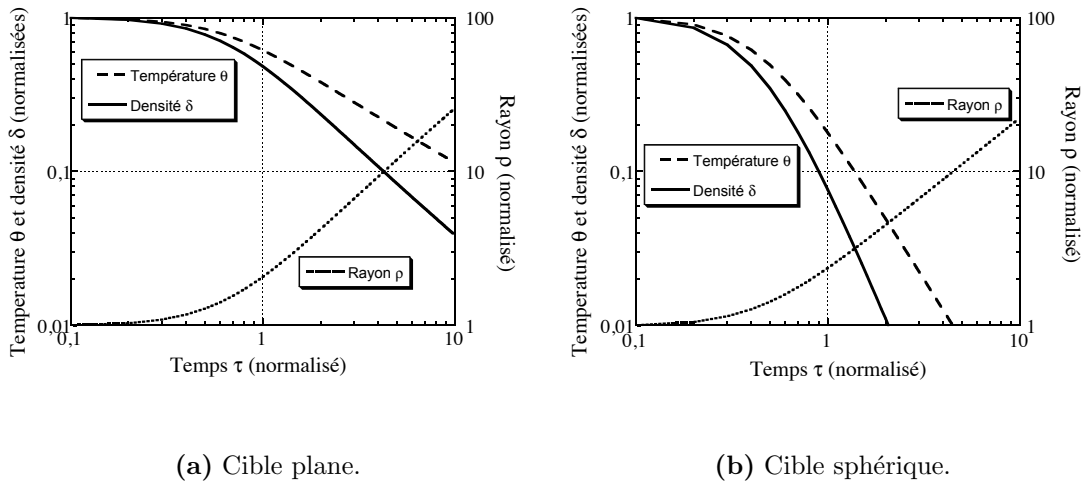
$$\begin{cases} \frac{\rho_{i+1} + \rho_{i-1} - 2\rho_i}{d\tau^2} = \frac{(2+D)}{\rho_i} \cdot \theta_i \\ \frac{\theta_{i+1} - \theta_i}{d\tau} = D \cdot (1 - \gamma) \cdot \frac{\theta_{i+1} + \theta_i}{\rho_{i+1} + \rho_i} \cdot \frac{\rho_{i+1} - \rho_i}{d\tau} \end{cases} \quad (4.11)$$

D'où les expressions de  $\rho$  et de  $\theta$  à l'indice  $i$  :

$$\begin{cases} \rho_{i+1} = \frac{(2+D)}{\rho_i} \cdot \theta_i \cdot d\tau^2 + 2\rho_i - \rho_{i-1} \\ \theta_{i+1} = \theta_i \times \frac{1+D \cdot (1-\gamma) \cdot (\rho_{i+1} - \rho_i) / (\rho_{i+1} + \rho_i)}{1-D \cdot (1-\gamma) \cdot (\rho_{i+1} - \rho_i) / (\rho_{i+1} + \rho_i)} \end{cases} \quad (4.12)$$

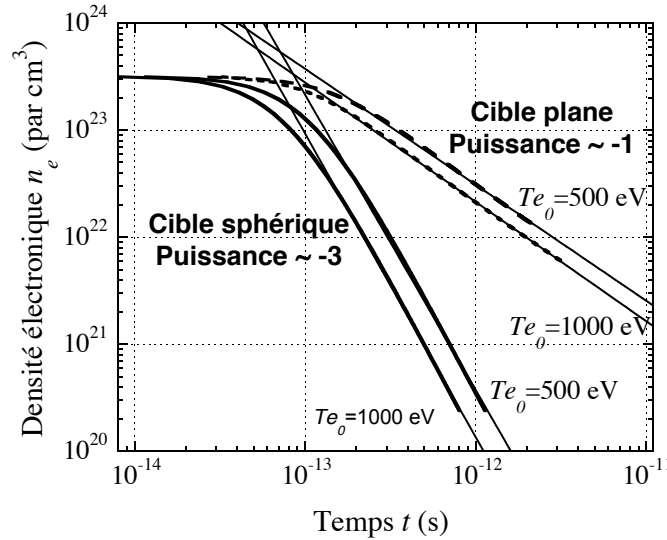
On peut ainsi évaluer le rayon  $\rho_{i+1}$  et la température  $\theta_{i+1}$  au pas de temps suivant. La détermination de  $\rho_{i+1}$  nécessitant la connaissance de  $\rho_{i-1}$  ainsi que de  $\rho_i$ , les conditions initiales sont  $\rho_{i=0} = \rho_{i=1} = 1$  et  $\theta_{i=1} = 1$ .

La figure 4.17 nous présente le résultat du modèle d'expansion hydrodynamique pour deux géométries différentes. Le rayon, la densité et la température électronique sont représentés normalisés en fonction du temps normalisé. Sur la figure 4.17(a) de gauche, la cible est plane, et sphérique sur la figure 4.17(b) de droite. L'épaisseur et le rayon évoluent de manière identique et tendent asymptotiquement vers  $c_{s0} \times t$ . En revanche, on peut se rendre compte en comparant ces deux graphiques que la température électronique et la densité décroissent de manière beaucoup plus rapide lorsque la cible est sphérique.



**Fig. 4.17:** Résultats numériques du modèle d'expansion hydrodynamique : température électronique et densité électronique normalisées en fonction du temps normalisé.

La figure 4.18 présente l'évolution de la densité électronique  $n_e$  avec deux températures initiales différentes. A chaque fois, la densité suit un plateau puis diminue. On peut voir que pour le cas de la cible plane (en tirets), la densité électronique décroît selon une loi en  $\sim 1/t$ , quelle que soit la température électronique initiale. Pour le cas de la cible sphérique (en trait plein), la densité décroît selon une loi en  $\sim 1/t^3$ , quelle que soit la valeur de la température électronique initiale.



**Fig. 4.18:** Résultats de la simulation numérique du modèle d'expansion hydrodynamique : densité électronique en fonction du temps, pour deux températures initiales différentes (500 et 1000 eV), selon deux configurations dimensionnelles (plane et sphérique).

Les lois de comportement de la densité électronique en fonction du temps, obtenues à l'aide de ce modèle d'expansion hydrodynamique simple, nous confortent dans l'idée d'une interprétation des données expérimentales basée sur un argument de géométrie : l'émission de rayonnement X nécessitant un plasma suffisamment chaud et dense, l'intensité de ce rayonnement doit chuter beaucoup plus rapidement en géométrie sphérique.

Le code étant décrit, nous allons préciser dans la section suivante le cadre dans lequel nous l'avons utilisé.

### 4.3.3 Calcul de l'émission X

#### 4.3.3.1 Utilisation du code collisionnel-radiatif Transpec

Le spectre de l'émission X est calculé par le code collisionnel-radiatif Transpec détaillé dans le chapitre 1 (Cf. section 1.4.2). Il peut travailler en post-processeur d'un code

hydrodynamique, qui fournit l'évolution de la densité ionique en fonction du temps et de l'espace, ou, comme ici, de la densité électronique  $n_e$  et de la température électronique  $T_e$ . Dans ce chapitre, l'entrée du code est assurée par le modèle simple d'expansion hydrodynamique décrit dans la section 4.3.2 précédente.

Le code TRANSPEC peut rendre compte de l'émission X de plasmas de différentes géométries. Selon la géométrie considérée, différents fichiers sont à paramétrer :

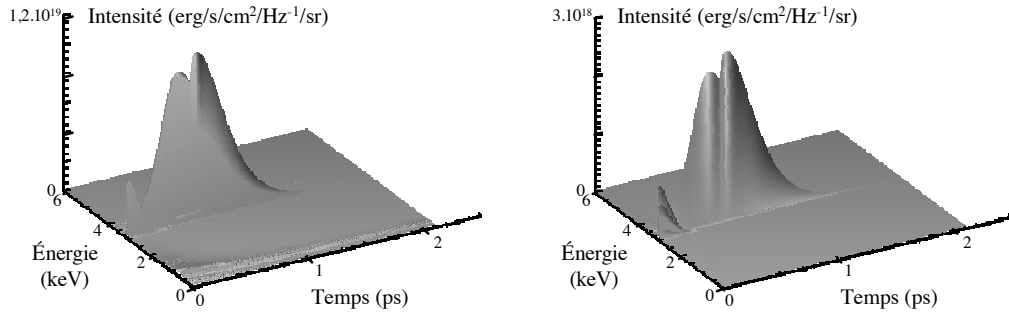
- *param* : pour les caractéristiques du calcul, à savoir pas de temps du calcul, pas de temps des fichiers de sortie, géométrie du plasma, températures entrant en jeu (température électronique avec ou sans température ionique), etc.
- *spec\_don* : pour la gamme spectrale des émissivités, opacités.
- *spec\_obs* : pour les caractéristiques de l'observation, géométrie, résolution, etc.

Le fichier d'entrée *hydrodyn* permet de spécifier le nombre et les caractéristiques des cellules considérées (couches de plasma). Les résultats présentés ont été obtenus avec un pas de temps suffisamment petit pour nous assurer de la convergence des résultats (pas de temps de l'ordre de la femtoseconde).

#### 4.3.3.2 Cas d'un chauffage instantané

Les figures 4.19 et 4.20 présentent des spectres X résolus en temps, calculés pour une cible plane et sphérique respectivement. Les figures de gauche présentent le signal calculé, et les figures de droite représentent le signal avec l'application d'un filtre correspondant à trois feuilles de Mylar aluminisées, c'est-à-dire le signal tel que nous pourrions le mesurer. Les spectres sont présentés sur une large gamme spectrale de 0 à 6 keV. On peut se rendre compte que l'application d'un nombre suffisant de feuilles pour composer un filtre permet de couper la composante basse énergie du signal. Les calculs sont réalisés avec des cibles planes de  $2 \times 275 \text{ \AA}$  d'épaisseur et des agrégats de  $275 \text{ \AA}$  de rayon, les deux constitués initialement d'argon à la densité solide. La température initiale est identique dans les deux cas et est fixée à 580 eV (valeur déduite de précédentes mesures pour un jet d'agrégat -Cf. Chap. 1). Ces calculs montrent bien que l'émission X est plus courte (quelques centaines de femtosecondes au lieu de quelques picosecondes) dans le cas d'une cible sphérique. Cependant, une remarque concernant l'utilisation du code Transpec s'impose : une telle hypothèse de dépôt instantané d'énergie n'est pas adaptée à une utilisation correcte du code Transpec. En effet, ce dernier nécessite un temps minimum pour calculer les différentes populations d'états responsables de l'émission X. C'est pourquoi l'émission X ne commence pas à "0 ps" sur les figures 4.19 et 4.20.

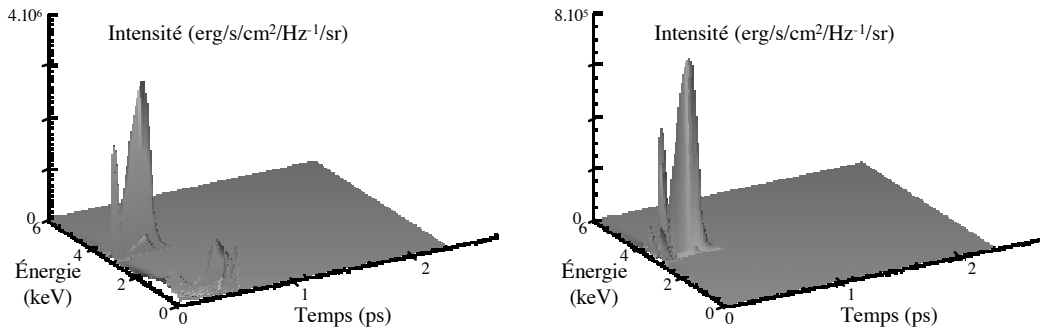
La figure 4.21 présente le profil temporel de l'émission intégrée en énergie (de 100 à 6100 eV). Les conditions correspondent comme aux figures précédentes à une température électronique initiale de 580 eV, un rayon d'agrégat de  $275 \text{ \AA}$  (géométrie sphérique). L'évolution en fonction du temps du signal intégré est représentée en trait plein. En appliquant un filtre (correspondant à la transmission de 3 feuilles de Mylar aluminisées), nous obtenons une allure légèrement différente (courbe en tirets longs, échelle de droite). Dans ce cas, l'émission est dominée par la raie  $\text{He}_\alpha$  et ses satellites. Ce calcul indique une durée d'émission de quelques centaines de femtosecondes seulement. Sur la même courbe est



(a) Spectre X résolu en temps calculé.

(b) Même spectre X avec application de la transmission de filtres.

**Fig. 4.19:** Spectre X résolu en temps, calculé pour une cible plane d'argon initialement à la densité solide, de température initiale 580 eV et d'épaisseur  $2 \times 275 \text{ \AA}$ .



(a) Spectre X résolu en temps calculé.

(b) Même spectre X avec application de la transmission de filtres.

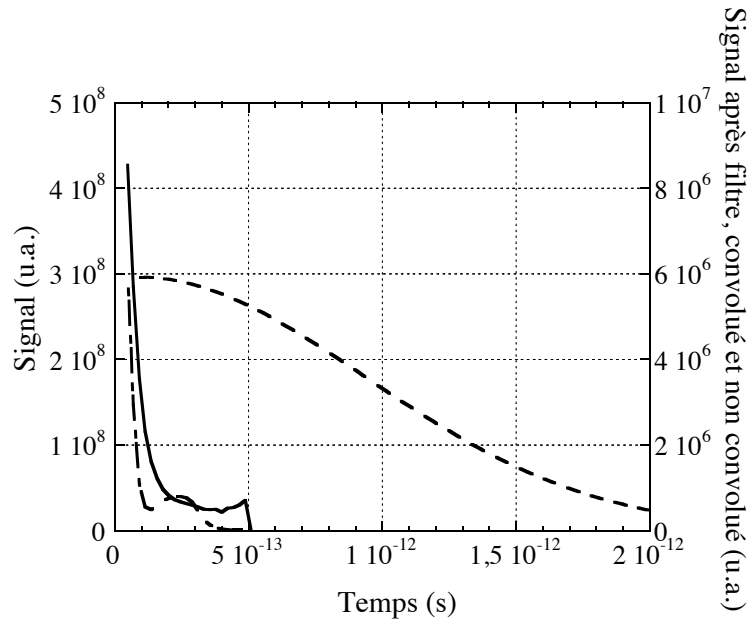
**Fig. 4.20:** Spectre X résolu en temps, calculé pour une cible sphérique d'argon initialement à la densité solide, de température initiale 580 eV et de rayon 275 Å.

représenté le signal convolué par la résolution temporelle largement dominante de notre instrumentation (2 ps).

L'étude démontrant que l'émission X après application des filtres était dominée par la raie  $\text{He}_\alpha$  et ses satellites, nous ne considérons par la suite que la gamme spectrale allant de 2,9 et 3,2 keV.

#### 4.3.3.3 Cas d'un chauffage étalé dans le temps

Les calculs précédents permettent d'interpréter la durée plus courte de l'émission X d'un agrégat, par rapport à celle d'une feuille irradiée. Les hypothèses restent néanmoins trop fortes pour estimer correctement cette durée, en particulier celle d'un dépôt instan-



**Fig. 4.21:** Profil temporel de l'émission intégrée en énergie pour une géométrie de cible sphérique. Échelle de gauche : signal sans filtre (trait plein). Échelle de droite : signal avec filtre (tirets-points), et signal avec filtre convolué avec une résolution instrumentale de 2 ps (tirets courts).

tané de l'énergie dans les agrégats à la densité solide. Des études précédentes [Caillaud 04] [Dorchies *et al.* 05] ont en effet montré que ce dépôt pouvait se réaliser sur des temps de l'ordre de quelques centaines de femtoseconde, temps pendant lesquels l'expansion de l'agrégat peut déjà avoir significativement commencé.

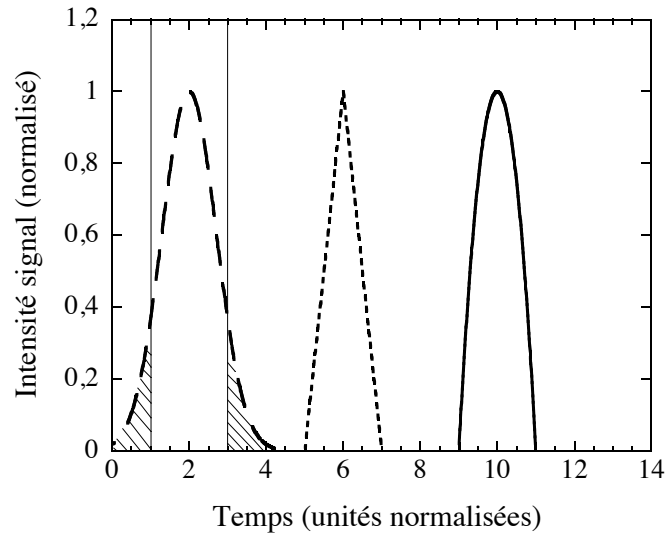
Plutôt qu'un dépôt initial instantané, on peut considérer que le dépôt se réalise selon un profil temporel gaussien, en dent de scie ou bien parabolique (Cf. Fig. 4.22). Le dépôt d'énergie étant limité dans le temps, nous avons choisi pour les résultats présentés ici une allure correspondant à une portion de parabole. Les durées indiquées correspondent à la pleine largeur à la base de la portion de parabole.

La quantité d'énergie déposée est gardée constante lorsque l'on modifie la durée du dépôt. Elle correspond à la limite d'un dépôt très bref, à la température électronique initiale de 580 eV utilisée dans la section précédente.

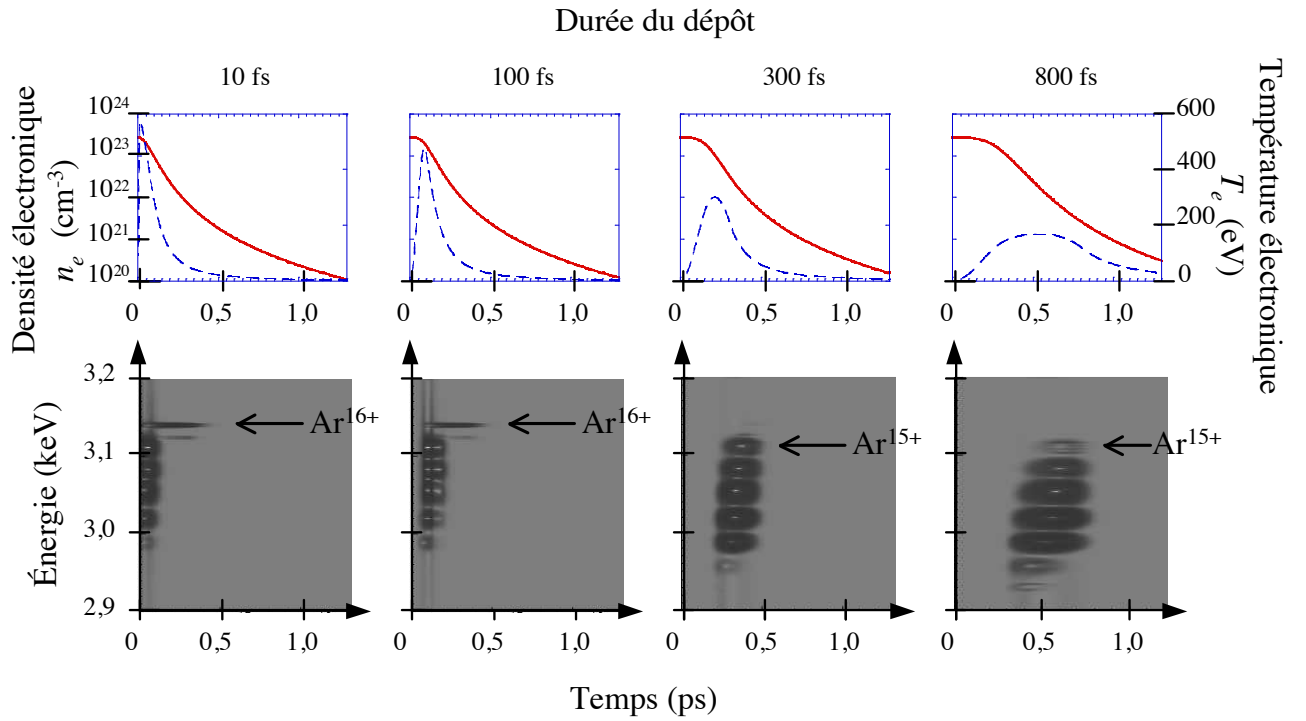
Le résultat de ces calculs est représenté en figure 4.23 où l'on fait varier pour les colonnes allant de gauche à droite la durée du dépôt d'énergie. Sur les figures supérieures sont indiquées la densité électronique (échelle de gauche, en trait plein) et la température électronique (échelle de droite, en tirets) en fonction du temps. Sur les figures inférieures sont présentés les spectres en fonction du temps.

On observe deux phénomènes :

- La durée de l'émission X augmente avec la durée du dépôt de l'énergie. Elle tend à



**Fig. 4.22:** Différentes formes pour le dépôt d'énergie en fonction du temps.



**Fig. 4.23:** Calculs pour différentes durées de dépôt de l'énergie (présentées en colonne, croissantes de gauche à droite). En haut : densité  $n_e$  et température  $T_e$  électronique (respectivement en trait plein et en tirets). En bas : Spectres X en fonction du temps.



s'identifier à la durée laser si on suppose un dépôt de même durée que l'impulsion laser. Cet effet irait dans le sens de nos mesures réalisées avec différentes durées laser (Cf. section 4.2.3).

- Lorsque la durée du dépôt d'énergie devient de quelques centaines de femtosecondes, on observe que les raies de l'émission X apparaissent les unes après les autres : d'abord celles caractéristiques des bas états de charge, puis les autres. Cette observation est la conséquence directe de la dynamique de l'ionisation qui se fait sur une centaine de femtosecondes. A la limite des longs dépôts d'énergie, on observe même la disparition de la raie  $\text{He}_\alpha$ , signe d'une ionisation limitée à  $\text{Ar}^{15+}$  pour une trop faible température électronique.

## 4.4 Conclusion

L'expérience présentée ici consistait en la première application d'un instrument possédant une résolution temporelle de l'ordre de la picoseconde à l'étude de l'émission X par les agrégats lorsqu'ils sont irradiés par un champ laser intense. Le résultat principal est que la durée de l'émission est extrêmement brève, et ce quelle que soit la taille des agrégats (dans la gamme étudiée) et la polarisation de l'onde incidente (linéaire ou circulaire).

Ce résultat peut être mis en perspective avec une expérience semblable réalisée avec une cible plane. Les résultats obtenus par P. Audebert et ses collaborateurs avec une feuille mince indiquent une durée d'émission plus longue. Cette différence peut être expliquée par un argument de géométrie. Un modèle d'expansion hydrodynamique simple indique que la densité électronique  $n_e$  et la température électronique  $T_e$  décroissent plus rapidement pour une géométrie de cible sphérique que pour une géométrie de cible plane. Des calculs avec le code collisionnel-radiatif Transpec montrent alors que la durée de l'émission X s'en ressent. Elle est plus courte d'un ordre de grandeur avec une cible sphérique, initialement chauffée à la même température.

Si l'on tient compte d'un temps non nul pour le dépôt de l'énergie dans les agrégats, une évolution plus fine des spectres X calculés est observée. Des durées de quelques centaines de femtosecondes sont obtenues pour la raie  $\text{He}_\alpha$  et ses satellites. Ces raies ne sont pas émises simultanément et apparaissent en suivant la dynamique de l'ionisation de l'agrégat.

Le chapitre suivant s'intéresse précisément, tant expérimentalement que numériquement, à l'historique des différentes raies.

# Bibliographie Chapitre 4

- [Audebert *et al.* 03] Audebert P., Nagels V., Geindre J.P., Dorchies F., Peyrusse O., Gary S., Girard F., Shepherd R., Gauthier J.-C. et Chenais-Popovics C., *X-ray spectroscopy of a thin foil plasma produced by a short-pulse high-intensity laser*, Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer **81** (2003), 19–30.
- [Caillaud 04] Caillaud T.,  
*Etude expérimentale de l'interaction laser-agrégats : Absorption, Chauffage, Emission X - Vers la réponse de l'agrégat unique*, Thèse de doctorat, Université Bordeaux I, Septembre 2004.
- [Ditmire *et al.* 95] Ditmire T., Donnelly T., Falcone R.W. et Perry M.D.,  
*Strong x-ray emission from high-temperature plasmas produced by intense irradiation of clusters*, Phys. Rev. Lett. **75** (1995), no. 17-23, 3122–3125.
- [Ditmire *et al.* 96] Ditmire T., Donnelly T., Rubenchik A.M., Falcone R.W. et Perry M.D.,  
*Interaction of intense laser pulses with atomic clusters*, Phys. Rev. A **53** (1996), no. 5, 3379–3402.
- [Dorchies *et al.* 05] Dorchies F., Caillaud T., Blasco F., Bonté C., Jouin H., Micheau S., Pons B. et Stevefelt J.,  
*Investigation of laser-irradiated Ar cluster dynamics from K-shell x-ray emission measurements*, Phys. Rev. E **71** (2005), 066410–1–8.
- [Gallant *et al.* 99] Gallant P., Jiang Z., Chien C.Y., Forget P., Dorchies F., Kieffer J.C., Pépin H., Peyrusse O., Mourou G. et Krol A.,  
*Spectroscopy of solid density plasmas generated by irradiation of thin foils by a fs laser*, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer **65** (1999), 243–252.
- [Kondo *et al.* 02] Kondo K., Mori M. et Shiraishi T.,  
*X-ray generation from fs laser heated Xe clusters*, Applied Surface Science **197-198** (2002), 138–144.
- [Larsson *et al.* 99] Larsson J. et Sjögren A.,  
*Evaluation of laser-irradiated Ar clusters as a source for time-resolved X-ray studies*, Rev. Sci. Instrum. **70** (1999), no. 5, 2253–2256.

- 
- [Namba *et al.* 06] Namba S., Hasegawa N., Nagashima K., Kawachi T., Kishimoto M., Sukegawa K. et Takiyama K.,  
*Efficient electron heating in nitrogen clusters irradiated with intense femtosecond laser pulses*, Phys. Rev. A **73** (2006), 013205.
- [Shiraishi *et al.* 02] Shiraishi T., Mori M. et Kondo K.,  
*Estimation of the pulse width of x-ray emission from Xe clusters excited by a subpicosecond intense Ti :sapphire laser pulse*, Phys. Rev. A **65** (2002), no. 045201.

# Chapitre 5

## Mesure des spectres X résolus en temps

### Sommaire

---

<b>5.1</b>	<b>Montage expérimental . . . . .</b>	<b>191</b>
<b>5.2</b>	<b>Résultats expérimentaux . . . . .</b>	<b>193</b>
5.2.1	Mesure de spectre . . . . .	193
5.2.1.1	Spectre non résolu en temps . . . . .	193
5.2.1.2	Stabilité . . . . .	193
5.2.2	Observation d'un spectre résolu en temps . . . . .	195
5.2.3	Effet de la taille des agrégats . . . . .	198
<b>5.3</b>	<b>Discussion et simulation . . . . .</b>	<b>199</b>
5.3.1	Modèle "nanoplasma" . . . . .	199
5.3.1.1	Hypothèses . . . . .	199
5.3.1.2	Profils temporels de $n_e$ et $T_e$ . . . . .	200
5.3.1.3	Estimation de l'énergie absorbée . . . . .	201
5.3.2	Calcul du spectre résolu en temps de l'émission X . . . . .	204
5.3.2.1	Spectre résolu en temps calculé . . . . .	204
5.3.2.2	Effet de l'éclairement laser . . . . .	204
5.3.3	Degré d'ionisation . . . . .	207
5.3.3.1	Résultat du code basé sur le modèle nano-plasma . . . . .	207
5.3.3.2	Résultat du code collisionnel-radiatif . . . . .	208
<b>5.4</b>	<b>Conclusion . . . . .</b>	<b>209</b>
	<b>Bibliographie Chapitre 5 . . . . .</b>	<b>211</b>

---



Le chapitre précédent rapporte l'expérience que nous avons réalisée concernant la résolution temporelle de la partie la plus énergétique du spectre émis par les agrégats irradiés. Nous avons pu mettre en évidence la brièveté du signal correspondant aux photons d'énergies supérieures à 2 keV. Cette gamme spectrale contient les raies de couche K (parallèlement résolues en spectre avec le spectromètre haute résolution mais intégrées en temps), et un continuum présentant une décroissance exponentielle (mesure avec le diagnostic Matrix lui-même intégré en temps). Dans ce chapitre, nous détaillons les résultats d'une autre campagne expérimentale pendant laquelle nous nous sommes attachés à résoudre temporellement et spectralement les raies de couche K. Cette étude a été motivée par plusieurs considérations :

- D'une part, ces raies sont supérieures en intensité d'au moins un ordre de grandeur au fond continu (voir par exemple figure 4.7). Aussi, ce sont les gammes spectrales correspondant à ces raies qui seront choisies de manière préférentielle pour des applications.
- D'autre part, il est crucial de connaître leur comportement temporel – en absolu (la durée de chacune des raies) et en relatif (chronologie de l'émission des différentes raies les unes par rapport aux autres) – pour déduire la dynamique de l'ionisation et déterminer les modèles les plus réalistes.

Diverses équipes ont déjà abordé expérimentalement la résolution spectrale et temporelle de plasmas créés par laser, par diverses techniques expérimentales (Cf. Chap. 3). Plus spécifiquement au moyen d'une caméra à balayage de fente, le nombre d'équipes est assez restreint, et nous pouvons relever notamment :

- L'institut d'optique quantique situé à Garching en Allemagne, utilisant un montage basé sur un cristal conique [Andiel *et al.* 03],
- Le laboratoire LULI, auprès de l'École Polytechnique à Palaiseau en France, utilisant un montage basé sur un cristal de même type [Audebert *et al.* 05],
- L'institut INRS à Varennes au Canada, utilisant la caméra à balayage de fente dans un montage de type von Hamos (cristal cylindrique) [Gallant *et al.* 03].

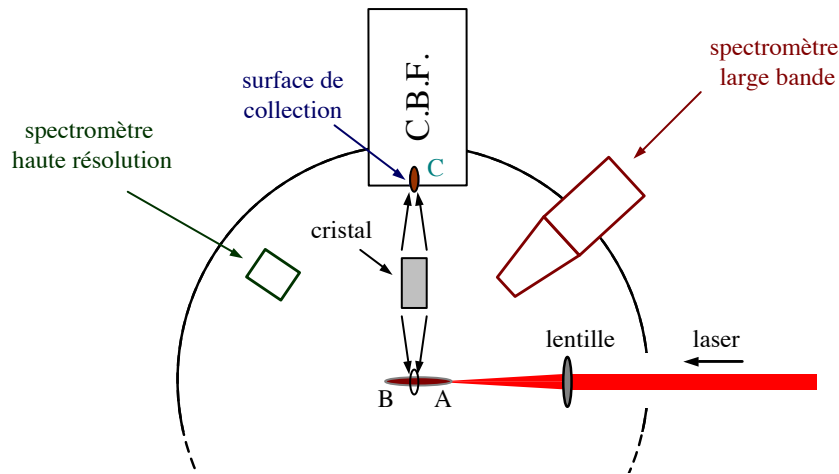
Cependant, aucune mesure n'a été réalisée concernant le rayonnement X d'agrégats. Afin de répondre à la double exigence de résolution spectrale et temporelle, nous avons couplé un cristal tronc conique à notre système de détection ultra-rapide (Cf. section 3.4).

Nous allons dans ce chapitre décrire dans une première partie le montage expérimental mis en œuvre (Cf. section 5.1). La partie suivante présentera les principaux résultats expérimentaux obtenus (Cf. section 5.2), et l'influence de la taille des agrégats notamment. Enfin, une discussion des résultats (Cf. section 5.3) est proposée en se basant sur un code utilisant le modèle nano-plasma et un code-collisionnel radiatif développés au sein de notre groupe.

## 5.1 Montage expérimental

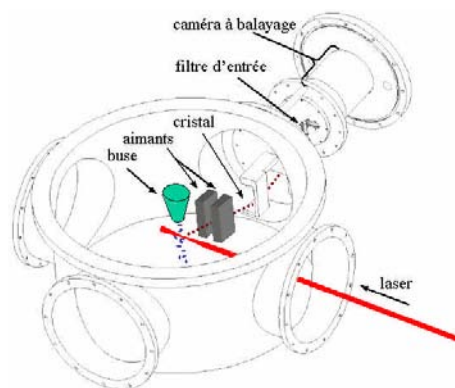
Résoudre temporellement nécessite d'être particulièrement attentif à la géométrie du montage expérimental. En effet, lors de l'expérience où nous observions la totalité du signal dont l'énergie était supérieure à 2 keV (Cf. section 4.1), nous avons choisi une

configuration où l'axe de visée de la caméra à balayage de fente (C.B.F.) était presque parallèle au plasma créé par le faisceau laser, afin de rendre négligeable l'effet de "cumul temporel" sur l'instrument des contributions successives provenant de chaque partie du plasma. La situation est ici différente. En effet, afin de résoudre spectralement, nous ajoutons au système de détection ultra-rapide un cristal, afin de disperser en longueur d'onde le signal issu du plasma. Ce cristal image le plasma émetteur, et la surface de collection de la C.B.F. permet alors de sélectionner spatialement l'émission X d'une partie du plasma. On peut voir sur le schéma présenté en figure 5.1 l'agencement des différents éléments : cristal et caméra à balayage de fente, ainsi que spectromètre à large bande et spectromètre à haute résolution. Le cristal étant pratiquement à mi-parcours entre le plasma et la fente d'entrée de la caméra à balayage de fente, le grandissement selon l'axe spatial est très proche de -1. La largeur de la surface de collection de la caméra à balayage de fente étant de  $93 \pm 10 \mu\text{m}$  (Cf. section 3.2.2.5), la contribution de l'effet géométrique est de l'ordre de 300 fs. Nous pouvons la considérer comme négligeable devant la résolution de l'instrument ( $\sim 2$  ps à mi-hauteur).



**Fig. 5.1:** Schéma de la configuration où l'axe de visée de la C.B.F. est perpendiculaire au plasma : agencement du cristal avec la caméra à balayage de fente et des différents diagnostics. Nota : l'axe constitué par la fente est perpendiculaire au plan du dessin.

Un schéma détaillant le montage est présenté en figure 5.2. Deux aimants sont placés de part et d'autre du trajet suivi par le rayonnement détecté, entre la source de rayonnement et le cristal, afin de prévenir le bombardement du cristal par des particules chargées énergétiques. La caméra à balayage de fente est située à une distance de  $\sim 600$  mm pour respecter la géométrie de focalisation du rayonnement imposée par le cristal. Le tube couplant le support de la caméra à balayage de fente à l'enceinte expérimentale n'est pas représenté pour plus de clarté.



**Fig. 5.2:** Schéma détaillant le montage expérimental.

## 5.2 Résultats expérimentaux

Avec le protocole expérimental présenté en section 3.6 pour le vide et les déclenches, ainsi que le montage du cristal présenté en section 3.4.1, nous avons cherché à résoudre spectralement et temporellement l'émission X de couche K des agrégats d'argon irradiés, dans la gamme de 3,04 à 3,19 keV. Une première partie s'attache à présenter les résultats expérimentaux, obtenus avec ou sans balayage temporel (Cf. section 5.2.2), pour différentes tailles d'agrégats (Cf. section 5.2.3).

### 5.2.1 Mesure de spectre

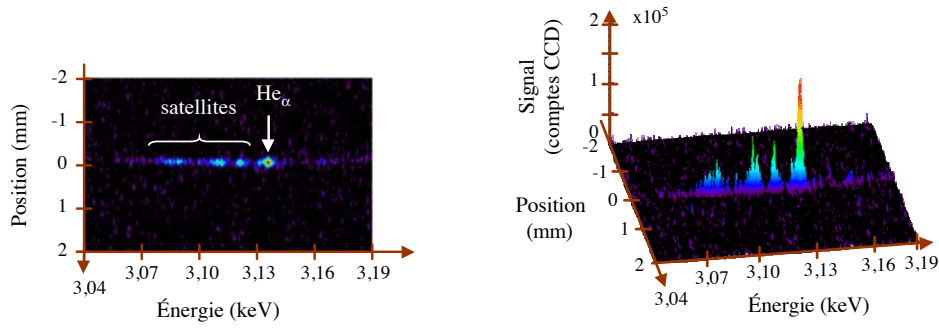
#### 5.2.1.1 Spectre non résolu en temps

La durée de l'émission X émise par les agrégats a été étudiée avec des conditions expérimentales correspondant à une énergie de 3,4 mJ sur cible et des agrégats de taille moyenne de 275 Å (40 bars en pression amont), avec une durée laser de 300 fs à mi-hauteur. Les durées d'accumulation sont précisées pour chacun des résultats présentés. La figure 5.3 nous présente une image obtenue après l'accumulation de près de 180 000 tirs, observée à l'aide de la caméra à balayage de fente en mode statique. Les figures de gauche et de droite (respectivement Fig. 5.3(a) et 5.3(b)) montrent le spectre en représentation 2D et 3D. On pourra reconnaître la raie caractéristique  $\text{He}_\alpha$  à 3,14 keV, et, à plus basse énergie, la raie d'intercombinaison et les raies correspondant aux degrés d'ionisation plus faibles (Cf. Fig. 2.28).

#### 5.2.1.2 Stabilité

Avant de faire varier les paramètres de l'interaction — taille des agrégats, durée de l'impulsion laser, etc. —, nous nous sommes assurés de la stabilité du signal mesuré. Nous





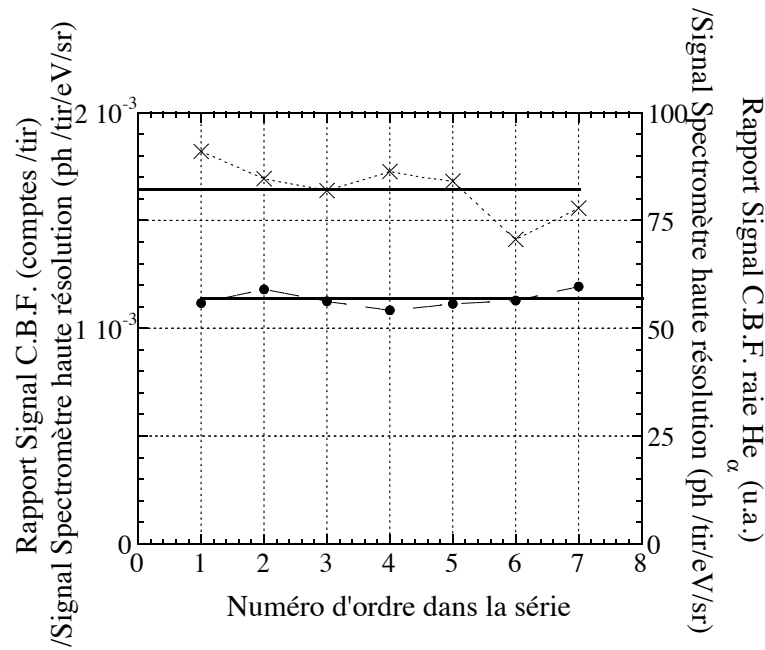
(a) Spectre X de couche K mesuré sur la C.B.F. en mode statique : image 2D.

(b) Spectre X de couche K mesuré sur la C.B.F. en mode statique : image 3D.

**Fig. 5.3:** *Résultat d'une mesure en mode statique. Les conditions expérimentales correspondantes sont de 3,4 mJ sur cible, avec une durée d'impulsion laser de 300 fs à mi-hauteur, et avec une pression amont de 40 bars ( $R_{agr} \sim 275 \text{ \AA}$ ). Les résultats présentés correspondent à l'accumulation de 5 mesures de 900 s avec une cadence effective d'interaction de 40 Hz (soit 180 000 tirs sur cible).*

bénéficions pour cette expérience d'un spectromètre haute résolution, dont nous avons déjà discuté les propriétés en section 2.4.4. Ce diagnostic a été calibré en absolu, et le nombre de photons mesurés dans la raie  $\text{He}_\alpha$  est la grandeur que nous avons choisie pour normaliser les intensités mesurées avec la caméra à balayage de fente.

Pour des conditions expérimentales constantes, nous avons mesuré l'intensité X émise par la source à la fois à l'aide du spectromètre de haute résolution, et par la caméra à balayage de fente. La figure 5.4 nous présente le rapport du signal mesuré à l'aide de la C.B.F. sur le signal (raie  $\text{He}_\alpha$ ) mesuré à l'aide du spectromètre haute résolution. Pour l'échelle de gauche (valeurs représentées en croix), le signal de la C.B.F. est sommé sur tout le spectre. Sous ces conditions, la stabilité relative entre les deux mesures est de l'ordre de  $\pm 10 \%$ . Cependant, intégrer le signal mesuré à l'aide de la caméra à balayage de fente sur le spectre revient à moyenner le rapport signal sur bruit sur toute la gamme spectrale détectée. Un critère de comparaison plus stable pourrait être une valeur obtenue par la caméra à balayage de fente qui ait le rapport signal sur bruit le plus important. Un tel critère pour la comparaison peut être le signal compris dans la raie correspondant à la raie  $\text{He}_\alpha$ . Aussi, sur la même figure, on a représenté, sur l'échelle de droite (valeurs représentées en points), le signal correspondant à l'intégrale des coups CCD contenus dans la raie  $\text{He}_\alpha$ . Cette opération est de toute façon plus cohérente, puisqu'elle n'est pas sensible à une éventuelle fluctuation du spectre d'émission de la source tir à tir. La stabilité relative obtenue est inférieure à  $\pm 5 \%$ . Ceci démontre la capacité de la caméra à balayage de fente à être également un détecteur fiable en absolu. Cependant, nous normaliserons tout de même par la suite les spectres présentés à l'aide du spectromètre à haute résolution. Cela permet par exemple de contrôler une éventuelle détérioration de la photocathode ou un éventuel désalignement du cristal, pendant les temps relativement longs de chaque séquence de mesure.



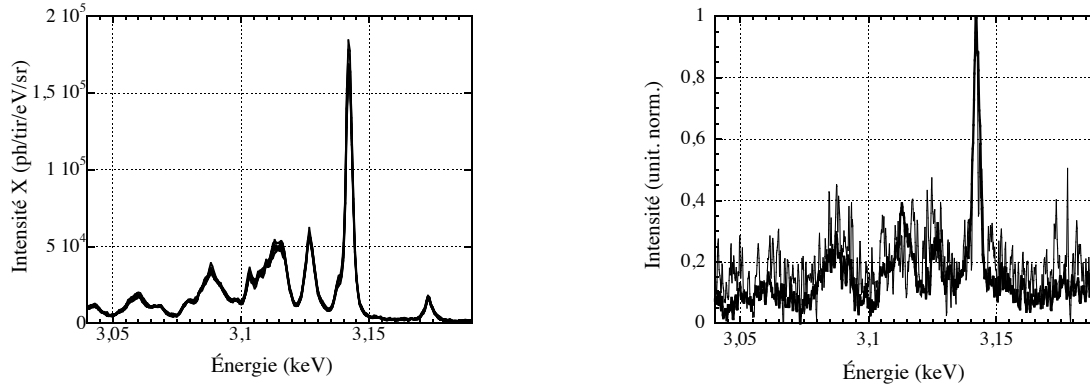
**Fig. 5.4:** *Fluctuation du signal mesuré par la caméra à balayage. À gauche (croix) : Signal de la caméra à balayage de fente normalisé par le signal mesuré (raie  $He_\alpha$ ) par le spectromètre à haute résolution. À droite (ronds) : Signal contenu dans la raie  $He_\alpha$  mesuré par la caméra à balayage de fente et normalisé par le signal mesuré (raie  $He_\alpha$ ) par le spectromètre à haute résolution.*

Concernant la stabilité du signal détecté par rapport au signal émis par la source, on peut s'intéresser avec profit aux figures présentées en 5.5. La figure de gauche (Cf. Fig. 5.5(a)) présente 7 spectres obtenus avec le spectromètre haute résolution, ainsi que leur moyenne en trait épais. Chaque spectre est le résultat de l'accumulation de 36 000 tirs sur cible. L'écart à la moyenne est, basé sur le signal contenu dans la raie  $He_\alpha$ , inférieur à  $\pm 2$  %. La figure de droite (Cf. Fig. 5.5(b)) présente les résultats obtenus pour la même série de tirs avec la caméra à balayage de fente. Sur cette figure est représentée en trait épais la moyenne de 17 mesures, ainsi qu'un spectre de la série (en pointillés) pour présenter visuellement la dispersion par rapport à la moyenne.

### 5.2.2 Observation d'un spectre résolu en temps

Un exemple de mesure réalisée avec la caméra à balayage de fente (C.B.F.) est indiqué sur la figure 5.6(a) : on peut y voir le comportement du spectre correspondant à la gamme 3,04-3,19 keV en fonction du temps pour une impulsion laser de 3,5 mJ sur cible irradiant des agrégats obtenus avec 40 bars de pression amont ( $R_{agr} \sim 275$  Å). La figure 5.6(b) présente le même résultat en vue 3D.

La méthode d'analyse des données a été présentée en section 3.6.3. Nous pouvons rappeler qu'il faut corriger le signal d'une rotation (angle entre la caméra CCD et l'axe de



(a) Spectromètre haute résolution : les spectres de 7 expériences sont représentés (traits fins), ainsi que leur moyenne (trait épais).

(b) Caméra à Balayage de Fente : la moyenne de 17 spectres est représentée en trait épais, et un spectre est montré en trait fin.

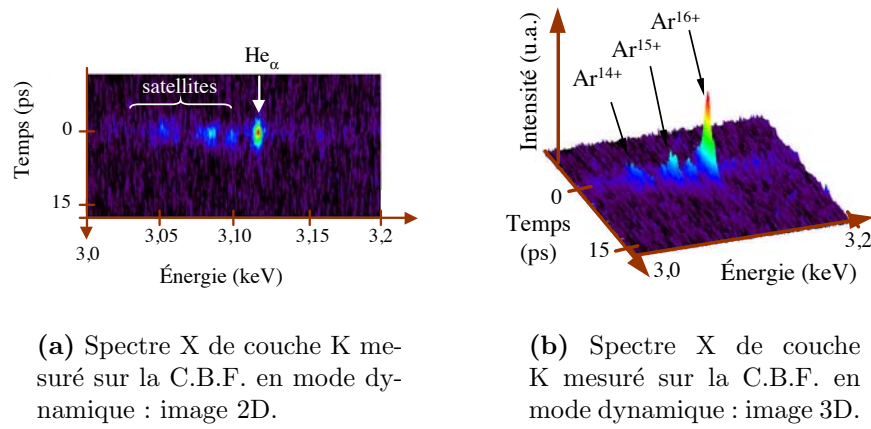
**Fig. 5.5:** *Stabilité de la source et de la détection. La configuration expérimentale correspond à une énergie sur cible de 3,3 mJ, en polarisation linéaire et une durée de 300 fs, avec 40 bars en pression amont.*

la C.B.F.), des courbures statique et dynamique de l'image, de la dispersion temporelle du cristal conique et enfin du décalage éventuel des images les unes par rapport aux autres pour un grand nombre de fichiers acquis.

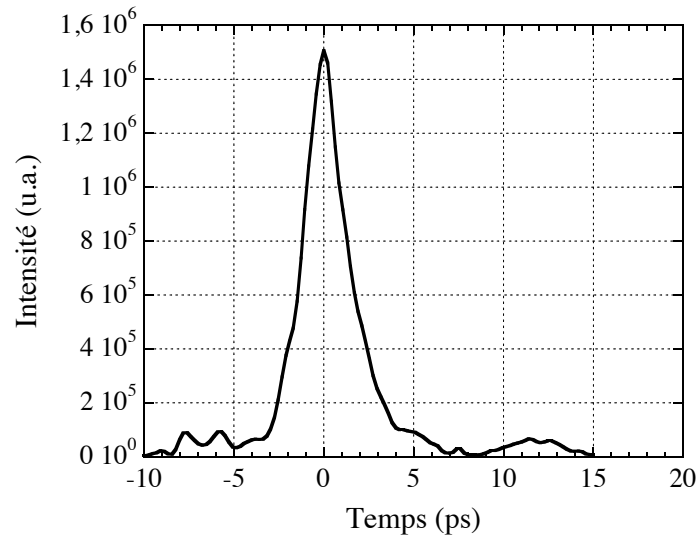
Chaque spectre présenté correspond à la sommation des résultats de plusieurs mesures. Le temps d'acquisition pour chacune des mesures était de 900 s, ce qui correspond à 36 000 interactions pour une cadence effective de 40 interactions par seconde. Pour une sommation de 17 mesures (Cf. Fig. 5.6, le temps total de l'ensemble des mesures était de l'ordre de 5 heures. La durée totale pour obtenir un spectre est relativement longue. Réaliser une sommation sur plusieurs mesures impose de s'assurer d'un excellent contrôle des conditions d'interaction et de vérifier la stabilité du système tout le long de chacune des mesures.

Une coupe selon l'énergie nous permet à partir des mêmes résultats expérimentaux correspondant à ceux présentés en figure 5.6 de représenter le profil de la raie  $\text{He}_\alpha$  en fonction du temps, ce qui est représenté en figure 5.7. De ces mesures, nous pouvons observer que la durée d'émission du rayonnement correspondant aux raies de couche K est inférieure à 3 ps, qui est ici la limite de résolution temporelle de notre système de détection.

Également, nous pouvons observer que les différentes raies sont séparées par un intervalle temporel inférieur à une picoseconde, qui est la limite imposée par la méthode d'analyse des données. Autrement dit, l'état de charge moyen des ions d'argon constituant les agrégats passe de  $\text{Ar}^{13+}$  à  $\text{Ar}^{16+}$  en moins d'une picoseconde.



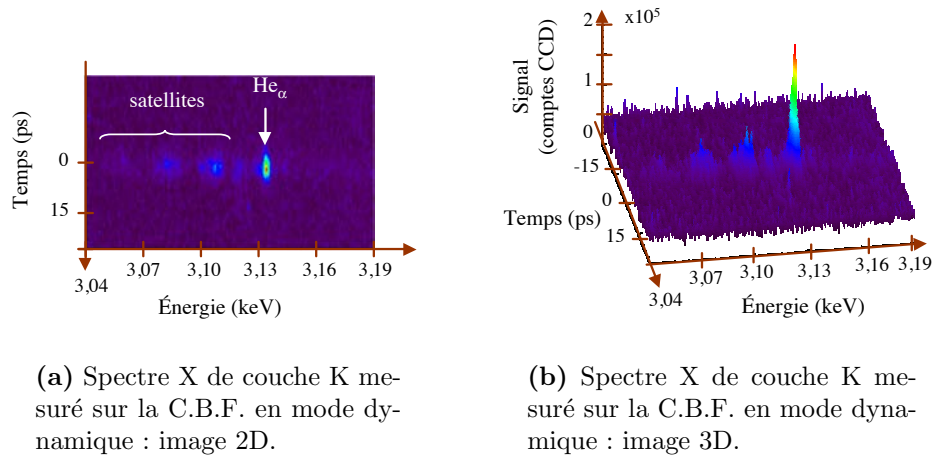
**Fig. 5.6:** *Résultat d'une mesure en mode dynamique. Les conditions expérimentales correspondantes sont de 3,5 mJ sur cible, avec une pression amont de 40 bars ( $R_{agr} \sim 275 \text{ \AA}$ ) et une durée d'impulsion de 300 fs à mi-hauteur. Les résultats présentés correspondent à l'accumulation de 10 mesures de 900 s avec une cadence effective d'interaction de 40 Hz (360 000 tirs sur cible).*



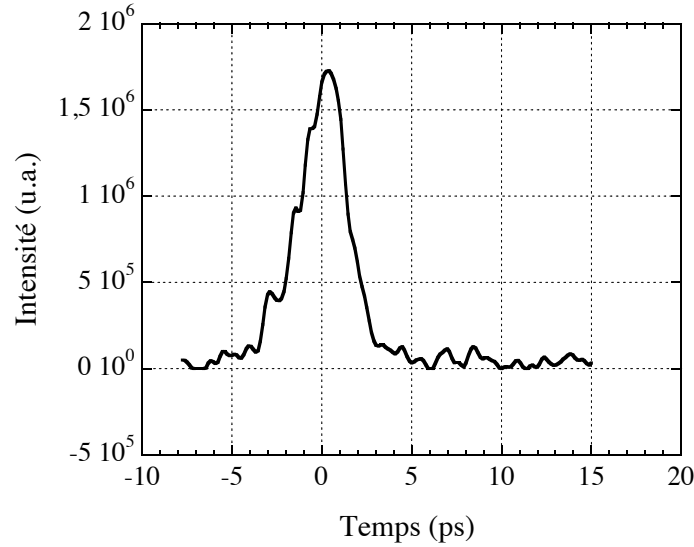
**Fig. 5.7:** *Évolution de la raie  $He_\alpha$  en fonction du temps (intégré spectralement sur 11 pixels), pour 3,5 mJ sur cible, avec une pression amont de 40 bars ( $R_{agr} \sim 275 \text{ \AA}$ ) et une durée d'impulsion de 300 fs à mi-hauteur.*

### 5.2.3 Effet de la taille des agrégats

Nous avons étendu l'étude du comportement temporel du rayonnement X en faisant varier la taille moyenne des agrégats. En passant de 40 à 60 bars en amont de la buse, la taille moyenne des agrégats passe de 275 Å à 350 Å (Cf. section 2.3). Les résultats obtenus sont présentés en figure 5.6. À gauche et à droite (Cf. Fig. 5.8(a) et 5.8(b)) sont représentés les spectres en vue 2D et 3D. L'énergie sur cible était de 3,0 mJ, et les résultats correspondent à l'accumulation de 17 mesures ayant chacune une durée de 900 s, avec 40 tirs sur cible par seconde. Pratiquement, nous n'observons pas de différence avec les résultats obtenus à 40 bars : la durée d'émission est inférieure à 3 ps, limite de la résolution temporelle de notre système de détection. On peut se rendre compte de ce résultat à l'aide de la figure 5.9 où le profil de la raie  $\text{He}_\alpha$  est représenté en fonction du temps.



**Fig. 5.8:** Résultat d'une mesure en mode dynamique. Les conditions expérimentales correspondantes sont de 3,0 mJ sur cible, avec une pression amont de 60 bars ( $R_{agr} \sim 350$  Å) et une durée d'impulsion de 300 fs à mi-hauteur. Les résultats présentés correspondent à l'accumulation de 17 mesures de 900 s avec une cadence effective d'interaction de 40 Hz (soit 612 000 tirs sur cible).



**Fig. 5.9:** Évolution de la raie  $He_\alpha$  en fonction du temps (intégré spectralement sur 11 pixels), pour 3,0 mJ sur cible, avec une pression amont de 60 bars ( $R_{agr} \sim 350 \text{ \AA}$ ) et une durée d'impulsion de 300 fs à mi-hauteur.

## 5.3 Discussion et simulation

Afin d'analyser les résultats expérimentaux présentés dans ce chapitre, nous allons mettre en regard ces résultats avec une simulation numérique plus élaborée que celle proposée au chapitre précédent. Nous pouvons obtenir les évolutions temporelles de la densité électronique  $n_e$  et de la température électronique  $T_e$  à l'aide du modèle dit "nanoplasma" présenté au chapitre 1. Un code a été développé au sein du laboratoire CELIA, et nous obtenons ainsi des profils de  $n_e$  et  $T_e$  qui peuvent être injectés dans le code collisionnel-radiatif TRANSPEC détaillé précédemment (Cf. section 1.4.2).

### 5.3.1 Modèle "nanoplasma"

#### 5.3.1.1 Hypothèses

Le code développé au sein du laboratoire CELIA est basé sur le modèle nanoplasma, présenté au chapitre 1. Nous rappelons ici les principales hypothèses qui constituent ce modèle [Ditmire *et al.* 96] :

- il n'y a pas de gradient thermique et la taille des agrégats est très petite devant l'épaisseur de peau,
- la distribution des vitesses électroniques est considérée isotrope et maxwellienne

- (implicitement, cela suppose un temps de thermalisation inférieur à la durée laser),
- la densité est homogène dans l'agrégat,
- la taille caractéristique de l'agrégat est supposée plus grande que la longueur de Debye,
- la densité proche du solide assurant une fréquence de collision importante, le modèle suppose que le mécanisme de chauffage prépondérant est l'absorption collisionnelle ("*Inverse Bremsstrahlung*") (Cf. Chap. 1).

Il faut garder à l'esprit que certaines de ces hypothèses sont fortes. Dans notre cas, les agrégats sont gros et leur taille est de l'ordre de grandeur de l'épaisseur de peau. D'autre part, des effets non-maxwelliens sont certainement mis en jeu dans cette interaction fortement transitoire, mais leur prise en compte est plus complexe [Deiss *et al.* 06]. L'explosion de l'agrégat se réalise principalement sous l'influence de la pression hydrodynamique, pour les gros agrégats soumis à des éclairagements laser modestes.

### 5.3.1.2 Profils temporels de $n_e$ et $T_e$

Les figures peuvent nous permettre d'élaborer un scénario de l'interaction.

Les figures présentées en 5.10 nous permettent d'élaborer un scénario de l'interaction. La figure 5.10(b) représente en fonction du temps l'évolution du rayon de l'agrégat (en tiret plein, échelle de gauche) ainsi que des champs électriques laser externe et interne (respectivement en pointillés et tirets longs), pour un éclairement crête de  $6.10^{15}$  W/cm<sup>2</sup>, une durée d'impulsion de 300 fs à mi-hauteur et un rayon initial d'agrégat de 275 Å. Le scénario de l'interaction peut se décomposer de la manière suivante :

- Aux premiers instants de l'interaction, le champ électrique au sein de l'agrégat s'identifie avec le champ laser, supposé de profil gaussien. L'ionisation par effet de champ permet alors de créer une population d'électrons au sein de l'agrégat. Ceci peut s'observer sur la figure 5.10(e). Cette figure représente en fonction du temps l'évolution de la densité électronique  $n_e$  et de la température électronique  $T_e$  (respectivement en trait plein et en tirets longs), pour les mêmes conditions d'interaction.
- On peut voir en effet aux premiers instants une brusque montée de la densité électronique, et son passage une première fois par la valeur  $3n_c$ , et cette première résonance correspond à un pic du champ électrique au sein de l'agrégat, avant que ce champ interne ne devienne pratiquement nul (à  $\sim -370$  fs).
- La densité électronique continue de croître légèrement sous l'effet de l'ionisation collisionnelle avant de diminuer sous l'effet de l'accroissement du volume de l'agrégat. La densité électronique ne passe alors une deuxième fois par la valeur  $3n_c$ .
- La résonance induit une brusque montée du champ électrique au sein de l'agrégat puis sa valeur s'identifie à nouveau au champ électrique extérieur. A cette seconde résonance, la température électronique  $T_e$  atteint sa valeur maximale.
- La pression hydrodynamique augmente ainsi brusquement, et conduit à l'explosion de l'agrégat, comme on peut voir avec l'évolution temporelle du rayon de l'agrégat.

À partir de ces figures, on peut comprendre l'optimum en durée d'impulsion que nous avons observé (Cf. Fig. 1.7). En effet, pour une impulsion laser très courte, il n'y aura plus d'énergie laser disponible à la seconde résonance. De manière semblable, pour une

impulsion laser très longue, il n'y aura pas encore d'énergie laser disponible à la seconde résonance.

La figure 5.10(d) représente la densité électronique  $n_e$  et la température électronique  $T_e$  en fonction du temps. Le rayon initial de l'agrégat est de 275 Å, et il est irradié par une impulsion laser de 300 fs de durée à mi-hauteur avec un éclairement crête de  $3.10^{15}$  W/cm<sup>2</sup>. La montée rapide de la densité électronique correspond à l'ionisation progressive des agrégats induite par l'énergie apportée par l'impulsion laser incidente, tandis que la décroissance est liée à l'augmentation du rayon des agrégats (détente de l'agrégat). Les figures 5.10(e) et 5.10(f) représentent la densité électronique  $n_e$  et la température électronique  $T_e$  en fonction du temps, pour un même rayon initial mais pour des conditions d'éclairement crête plus élevée :  $1.10^{16}$  et  $5.10^{16}$  W/cm<sup>2</sup> respectivement. On peut voir que la densité électronique maximale atteinte est légèrement plus importante pour un éclairement plus grand, et que le temps de décroissance de la densité est plus court pour un éclairement également plus important.

La figure 5.10(a) représente le rayon de l'agrégat (en trait plein) ainsi que les champs électriques interne (en tirets) et externe (en pointillés) en fonction du temps, pour un éclairement crête de  $3.10^{15}$  W/cm<sup>2</sup>. Les figures 5.10(b) et 5.10(c) représentent le rayon de l'agrégat ainsi que les champs électriques externe et interne en fonction du temps, pour des éclairements crête de  $1.10^{16}$  et  $5.10^{16}$  W/cm<sup>2</sup> respectivement. Le profil temporel du rayon de l'agrégat indique que celui-ci s'expand relativement de plus en plus tôt lorsque l'éclairement augmente, avec des résonances de champs électriques internes de plus en plus importantes.

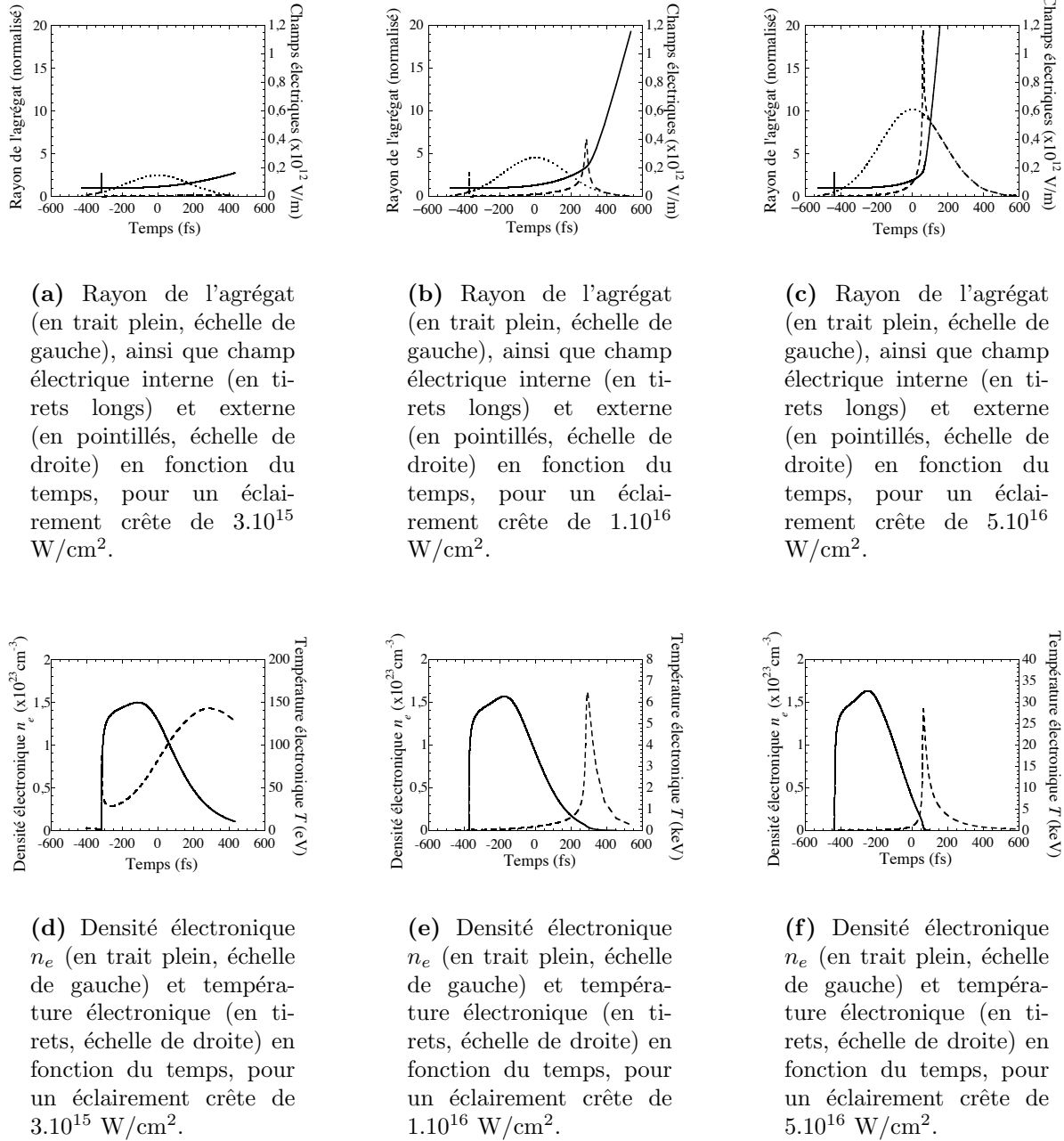
### 5.3.1.3 Estimation de l'énergie absorbée

Afin de comparer cette approche d'une part avec celle présentée en fin de chapitre précédent (Cf. section 4.3), et d'autre part avec les mesures d'énergie absorbée (Cf. Chap. 1), nous nous intéressons ici à la quantité d'énergie absorbée par l'agrégat avec le code basé sur le modèle nano-plasma. Les différentes énergies considérées ici sont :

- L'énergie cinétique des ions (moyennée sur l'agrégat et estimée pour un ion) :  $E_{cin} = (3/10) \times m_i (\Delta R / \Delta t)^2$ , où  $m_i$  est la masse d'un ion, et  $\Delta R / \Delta t$  représente la variation du rayon de l'agrégat par rapport au temps.
- L'énergie thermique des électrons (estimée pour un électron) :  $E_{th} = 3/2 \times (k_B T_e)$ , où  $k_B$  est la constante de Boltzmann.
- L'énergie utilisée pour l'ionisation (moyennée sur l'agrégat et estimée pour un seul électron) :  $E_{ionisation} = \left( \sum_{j=1}^{18} (N_{Ar^{j+}} \times \sum_{l=0}^{j-1} P_l) \right) / (N_i \times Z^*)$ , où  $N_{Ar^{j+}}$  est le nombre d'ions ionisés  $j$  fois et  $P_l$  est le potentiel d'ionisation pour un ion  $l$  fois chargé,  $Z^*$  est le degré d'ionisation moyen et  $N_i$  est le nombre d'ions dans l'agrégat.

Nous présentons en figure 5.11(a) l'évolution de l'énergie cinétique des ions  $E_{cin}$  par ion, l'énergie thermique des électrons  $E_{th}$  par électron et l'énergie d'ionisation moyenne  $E_{ionisation}$  par électron en fonction du temps, ainsi que l'énergie totale absorbée  $E_{tot}$  sommée sur tout l'agrégat. L'éclairement crête est dans ce cas de  $3.10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> et le rayon initial de l'agrégat est de 275 Å. L'énergie totale absorbée correspond à 30 GeV par agré-



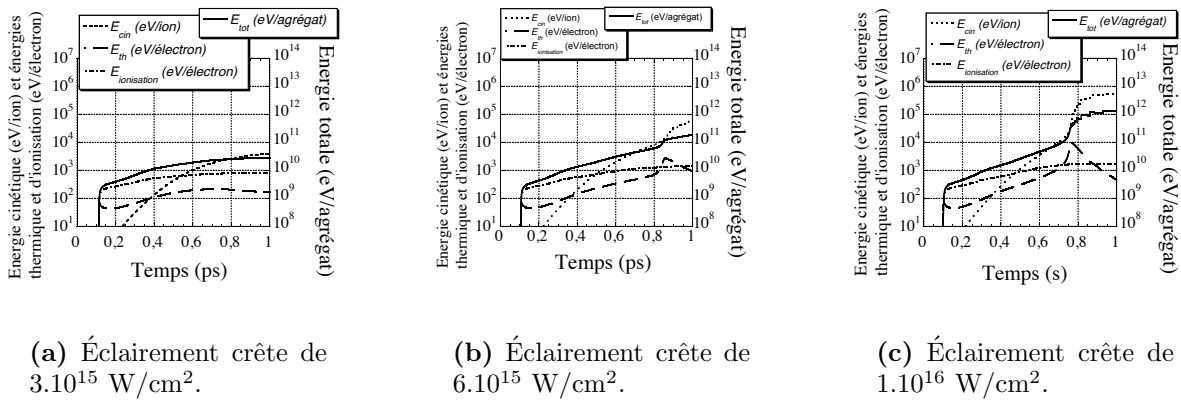


**Fig. 5.10:** En haut : profils de la densité électronique  $n_e$  et de la température électronique  $T_e$  en fonction du temps. En bas : profils du rayon de l'agrégat, des champs électriques interne et externe en fonction du temps. De gauche à droite : l'éclairement crête est de  $3.10^{15}$ ,  $1.10^{16}$  et  $5.10^{16}$  W/cm<sup>2</sup> respectivement. La durée de l'impulsion laser est de 300 fs à mi-hauteur. Pour chacun des cas présentés ici, le rayon initial de l'agrégat est de 275 Å.

gat.

Les figures 5.11(b) et 5.11(c) présentent l'évolution des énergies discutées ci-dessus en fonction du temps, pour des conditions d'éclairement correspondant à  $6.10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> et  $1.10^{16}$  W/cm<sup>2</sup> respectivement. On voit l'effet de résonance sur l'énergie thermique  $E_{th}$  apparaître pour un éclairement croissant. Les spectres X obtenus avec ces cas de figure (voir section suivante) semblent correspondre avec nos spectres expérimentaux. Nous obtenons ici une énergie absorbée de 130 GeV et 1000 GeV respectivement pour un agrégat.

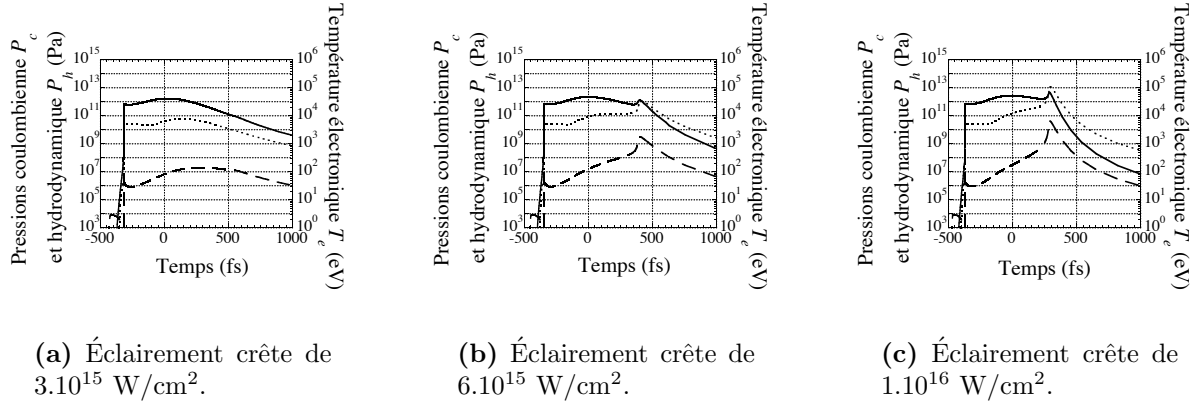
Les calculs issus du modèle nano-plasma indiquent que lorsque l'éclairement crête augmente, l'énergie totale absorbée augmente très rapidement de manière non linéaire, sans que l'énergie thermique soit pourtant augmentée dans des proportions semblables. Pour des éclairements plus importants que présentés, l'énergie thermique reste du même ordre de grandeur. Parallèlement, lorsque l'éclairement augmente, l'expansion de l'agrégat est plus brutale (ce qui a pour effet de "geler" la distribution des états de charge et l'émission X). Pour des éclairements supérieurs à  $10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>, on s'attend donc *a priori* à une saturation du rayonnement X.



**Fig. 5.11:** Énergies cinétique, thermique, d'ionisation (échelles de gauche) et énergie totale absorbée (échelles de droite) en fonction du temps pour différentes conditions d'éclairement. Le rayon initial de l'agrégat est de 275 Å. La durée de l'impulsion laser est de 300 fs à mi-hauteur.

Les figures présentées en 5.12 indiquent le comportement temporel des pressions coulombiennes  $P_c$  et hydrodynamique  $P_h$  ainsi que la température électronique  $T_e$ , pour des éclairements croissants sur les figures allant de gauche à droite. On voit que pour de faibles valeurs d'éclairement, la pression totale est purement hydrodynamique, et la pression coulombienne ne semble pas intervenir dans l'évolution du rayon de l'agrégat. En revanche, pour des éclairements crêtes plus grands que  $\sim 6.10^{15}$  W/cm<sup>2</sup>, la température électronique  $T_e$  est plus importante et favorise l'augmentation du nombre d'électrons qui se sont échappés de l'agrégat ("free-streaming", Cf. Chap. 1). Ceci semble expliquer la prédominance de la pression coulombienne, même pour des agrégats de taille importante (rayon initial de 275 Å), pour les temps suivant la résonance. Dans ce régime d'interaction, le fait que la pression coulombienne soit plus grande que la pression hydrodynamique lors de l'évolution de l'agrégat (postérieurement à la résonance) explique qu'en fonction

de l'éclairement, l'absorption de l'énergie totale augmente beaucoup, tandis que l'énergie thermique augmente relativement peu.



**Fig. 5.12:** Pressions coulombienne  $P_c$  (en pointillés) et hydrodynamique  $P_h$  (en trait plein, échelle de gauche) ainsi que température électronique  $T_e$  (en tirets, échelle de droite) en fonction du temps, pour différentes conditions d'éclairement. Le rayon initial de l'agrégat est de 275 Å. La durée de l'impulsion laser est de 300 fs à mi-hauteur.

### 5.3.2 Calcul du spectre résolu en temps de l'émission X

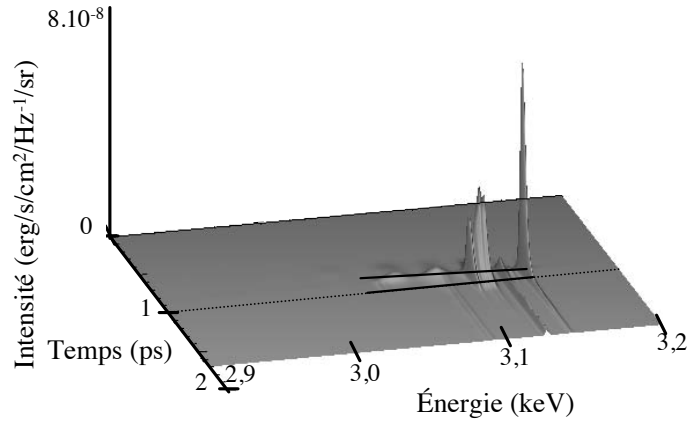
Le spectre de l'émission X est calculé à l'aide du code collisionnel-radiatif Transpec, déjà présenté au chapitre 1 (Cf. section 1.4.2). Avec les comportements de la densité électronique  $n_e$  et de la température électronique  $T_e$  obtenus à l'aide du code basé sur le modèle nano-plasma, le code Transpec fonctionne en post-processeur et calcule le rayonnement X associé à chaque couple densité-température pour chaque pas de temps.

#### 5.3.2.1 Spectre résolu en temps calculé

La figure 5.13 présente un spectre X en fonction du temps calculé à l'aide du code Transpec. Les conditions correspondent à un rayon initial d'agrégat de 275 Å, et un éclairement crête de  $6.10^{15}$  W/cm<sup>2</sup>. On peut voir que la durée du rayonnement pour la gamme spectrale indiquée ici est très brève : la durée est de l'ordre de  $50 \pm 10$  fs à mi-hauteur pour la raie He $\alpha$ . Par ailleurs, les raies n'apparaissent pas ensemble mais les unes après les autres : la progression de l'apparition des raies est estimée à  $60 \pm 10$  fs pour un intervalle de 100 eV centré sur 3,1 keV.

#### 5.3.2.2 Effet de l'éclairement laser

La figure 5.14(a) présente un autre spectre X calculé en fonction du temps. Le rayon initial de l'agrégat est de 275 Å, mais l'éclairement crête est de  $3.10^{15}$  W/cm<sup>2</sup>. On voit



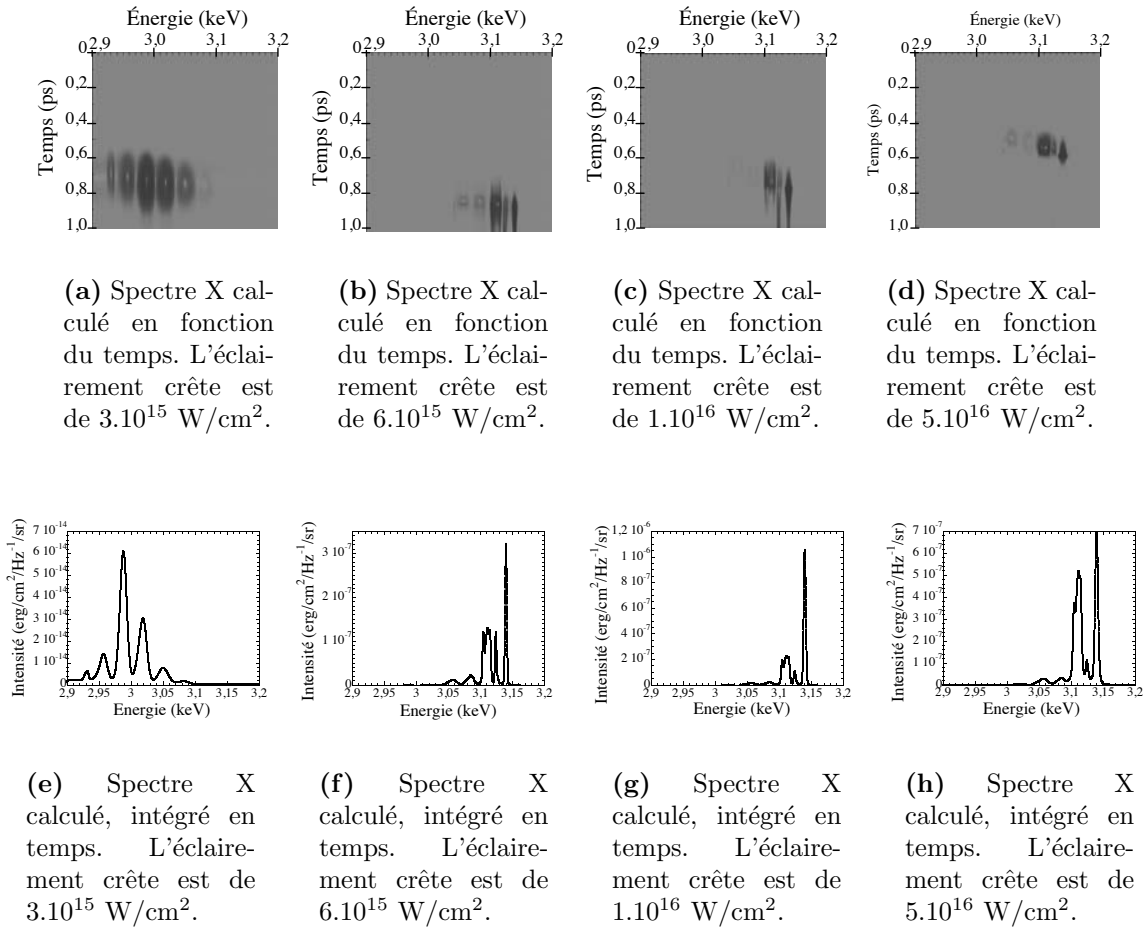
**Fig. 5.13:** Spectre calculé du rayonnement X de couche K émis par un agrégat de rayon initial de 275 Å, avec un éclairement de  $6.10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> et une durée laser de 300 fs à mi-hauteur. Les traits épais sont indiqués pour aider à visualiser l'écart temporel de deux radiations séparées de 100 eV centrées sur 3,1 keV.

nettement les raies apparaître successivement. La figure 5.14(e) indique pour ce même cas de figure le spectre calculé intégré en temps, tel que nous pouvons le mesurer avec le spectromètre de haute résolution (ou bien en intégrant la mesure obtenue avec la caméra à balayage de fente selon l'axe temporel). On voit ici que le rayonnement correspondant aux états  $\text{Ar}^{10+}$  et  $\text{Ar}^{11+}$  (à 2090 et 3020 eV respectivement) est prépondérant. Les figures 5.14(b), 5.14(c) et 5.14(d) présentent les spectres X calculés pour des éclairements de  $6.10^{15}$ ,  $1.10^{16}$  et  $5.10^{16}$  W/cm<sup>2</sup> respectivement. Les états de charge obtenus sont de plus en plus élevés pour un éclairement plus important. On peut retrouver ce résultat dans les spectres intégrés en temps, présentés aux figures 5.14(f), 5.14(g) et 5.14(h) respectivement. Lorsque l'éclairement crête devient très important (*i.e.*  $5.10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>), on observe sur le spectre intégré en temps, que l'intensité relative des satellites lithumoides ( $\text{Ar}^{15+}$ ) augmente à nouveau par rapport à la raie  $\text{He}_\alpha$  ( $\text{Ar}^{16+}$ ). Ceci pourrait paraître contradictoire avec une ionisation moyenne accrue. En fait, c'est l'expansion plus brutale de l'agrégat qui diminue le temps pendant lequel le rayonnement est émis, notamment dans la raie  $\text{He}_\alpha$  qui devient excessivement brève (moins de 40 fs à mi-hauteur) et ne présente plus de queue aux temps longs.

Nous pouvons comparer ces différents spectres calculés avec ceux obtenus expérimentalement. Avec une énergie sur cible de l'ordre de 3,0-3,5 mJ, l'éclairement crête est de l'ordre de  $(1,6 \pm 0,7) \cdot 10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>, avec une durée d'impulsion laser de 300 fs à mi-hauteur. La prise en compte de l'effet de réfraction fait diminuer l'éclairement crête maximal estimé dans le volume d'interaction d'un facteur de l'ordre  $3 \pm 1$  (Cf. Chap. 1 et [Caillaud *et al.* 06]). Aussi, l'éclairement crête effectif est de  $(5 \pm 4) \cdot 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup>. Cette incertitude nous oblige à une certaine modestie dans l'analyse qui peut être faite, mais nous avons néanmoins une fourchette autour du cas  $6.10^{15}$  W/cm<sup>2</sup>. Pour ce cas, nous avons évalué l'énergie absorbée à  $24 \pm 10$  GeV par agrégat expérimentalement (Cf. Chap. 1), et à  $130 \pm 30$  GeV par agrégat à l'aide du calcul (Cf. Fig. 5.11(b)). L'accord n'est pas parfait, mais il faut garder à l'esprit que l'énergie absorbée calculée varie beaucoup dans ce domaine d'éclairement (30 GeV à  $3.10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> et 1000 GeV à  $1.10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>).

Nous trouvons un relativement bon accord entre les spectres intégrés en temps expérimental (Cf. Fig. 5.5(a) par exemple) et calculé (Cf. Fig. 5.14(f)). Il faut là aussi rester modeste dans la comparaison, car nous observons un volume d'interaction, et les éclaircements crêtes sont plus faibles pour les agrégats périphériques. Cet effet pourrait cependant rendre plus intenses éventuellement les raies satellites telles que nous les observons expérimentalement, et ceci irait dans le sens d'une amélioration pour l'accord entre l'expérience et le calcul.

On peut aussi retenir que la simulation à l'aide du code collisionnel-radiatif indique une durée de rayonnement X très brève, inférieure à 100 fs à mi-hauteur pour la raie  $\text{He}_\alpha$ , et un écart relatif des raies inférieur à 200 fs. Ces résultats sont en accord avec nos résultats expérimentaux, où la durée d'émission de chacune des raies a été estimée à moins de 3 ps, limite de la résolution temporelle de notre instrumentation, avec un écart relatif des raies inférieur à 1 ps, limite de résolution là encore de notre instrumentation.

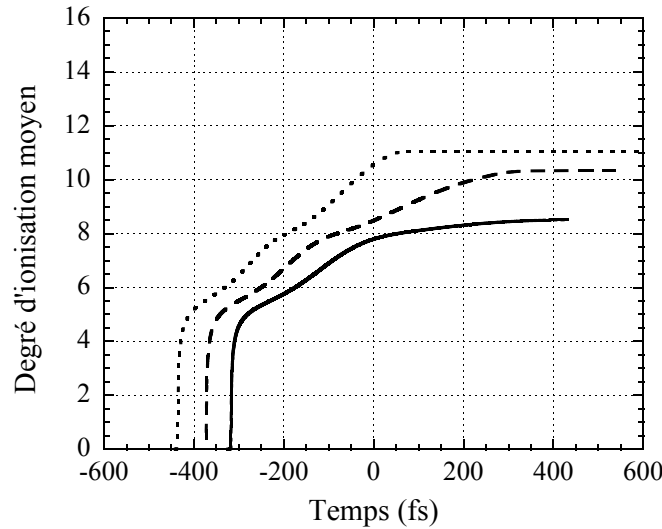


**Fig. 5.14:** *En haut : spectres X calculés, résolus en temps. En bas : spectres X calculés, intégrés en temps. Le rayon initial de l'agrégat considéré est à chaque fois de 275 Å, tandis que l'éclairement crête correspondant à chacune des colonnes allant de gauche à droite est de  $3.10^{15}$ ,  $6.10^{15}$ ,  $1.10^{16}$  et  $5.10^{16} \text{ W/cm}^2$  respectivement. La durée de l'impulsion laser est de 300 fs à mi-hauteur.*

### 5.3.3 Degré d'ionisation

#### 5.3.3.1 Résultat du code basé sur le modèle nano-plasma

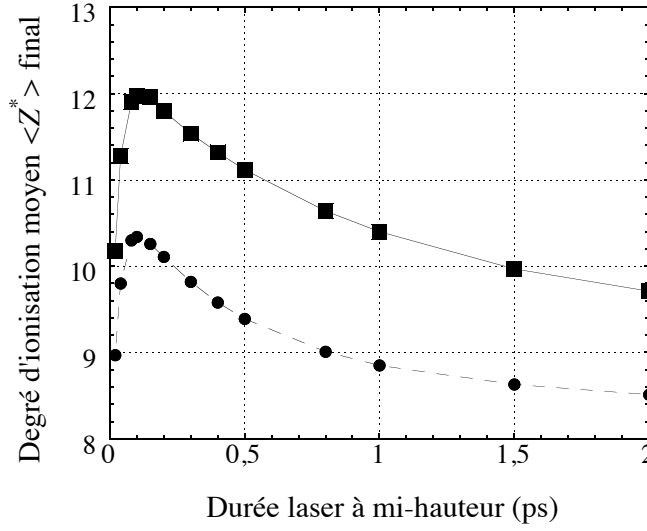
Nous présentons en figure 5.15 le degré d'ionisation moyen  $\langle Z^* \rangle$  calculé en fonction du temps, pour différentes conditions d'éclairements, avec un rayon d'agrégat initial de 275 Å. Le degré d'ionisation moyen augmente en fonction du temps et atteint une valeur de saturation après le passage de l'impulsion laser. On voit que le degré d'ionisation moyen atteint après l'interaction est plus important pour un éclairement plus important.



**Fig. 5.15:** Degré d'ionisation moyen  $\langle Z^* \rangle$  calculé pour différentes conditions d'éclairements sur cible en fonction du temps. L'éclairement sur cible est de  $3 \cdot 10^{15}$ ,  $1 \cdot 10^{16}$  et  $5 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2$  pour les courbes représentées en trait plein, tirets et pointillés respectivement, et le rayon d'agrégat initial est de 275 Å. La durée laser est de 300 fs à mi-hauteur.

Le degré d'ionisation moyen final est représenté sur la figure 5.16 en fonction de la durée laser, pour différentes conditions de rayon d'agrégat initial [Dorchies *et al.* 05]. Le degré d'ionisation est plus important pour des agrégats dont la taille est plus importante. Par ailleurs, le degré d'ionisation moyen final atteint un optimum pour une durée d'impulsion laser de l'ordre de 100-200 fs dans la gamme étudiée.

Ce phénomène a été observé expérimentalement (travail antérieur à cette thèse) mais avec des durées optimales du laser plus élevées, de 250 à 500 fs à mi-hauteur. Un désaccord plus important est observé sur le degré d'ionisation moyen, puisque le calcul atteint difficilement  $\langle Z^* \rangle = 12$  alors que les spectres X intégrés en temps mesurés avec les mêmes paramètres laser et d'agrégat montrent un degré d'ionisation moyen plutôt autour de 15 (en tout cas une prépondérance de la raie  $\text{He}_\alpha$  et de ses satellites lithumoides).



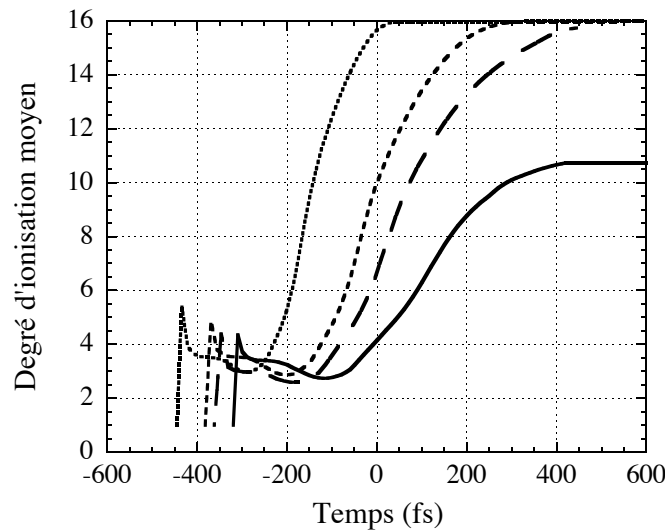
**Fig. 5.16:** Degré d'ionisation moyen  $\langle Z^* \rangle$  final calculé pour différentes durées d'impulsion laser et tailles d'agrégats. La fluence maximale est de  $8,0 \cdot 10^3 \text{ J/cm}^2$  sur cible, valeur correspondant aux conditions expérimentales. En cercles : Calculs pour un rayon d'agrégat de l'ordre de  $\sim 180 \text{ Å}$ . En carrés : Calculs pour un rayon d'agrégat de l'ordre de  $\sim 350 \text{ Å}$ .

### 5.3.3.2 Résultat du code collisionnel-radiatif

Nous présentons ici les résultats obtenus avec le code collisionnel-radiatif Transpec, pour des conditions de taille d'agrégat et d'éclairement identiques. Le degré d'ionisation moyen  $\langle Z^* \rangle$  en fonction du temps est représenté en figure 5.17 pour différentes conditions d'éclairement. Comme on pourrait *a priori* s'y attendre, on peut observer que le degré d'ionisation moyen a une valeur plus importante pour un éclairement laser plus important. Par ailleurs, ce degré d'ionisation augmente plus tôt pour un éclairement plus important (phénomène déjà observé avec le code "nanoplasma"). Pour chacune des trois courbes, les tout premiers instants de l'ionisation font suivre au degré d'ionisation moyen un profil "piqué". Ce profil ne semble pas avoir de sens physique mais l'origine pourrait provenir de la variation rapide de la densité électronique qui n'est pas traitée correctement par le code Transpec. Une fois ce "pic" passé, l'ionisation se stabilise puis augmente rapidement à un instant qui correspond à la montée brusque de la température électronique calculé à partir du modèle nanoplasma (Cf. Fig. 5.10(d), (b) et (c)). Le degré d'ionisation moyen atteint des valeurs nettement plus élevées qu'avec le code basé sur le modèle nano-plasma et sature à  $\langle Z^* \rangle = 16$  dès que l'éclairement crête est supérieur ou égal à  $6 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$ .

Le résultat obtenu ici semble être en contradiction avec le résultat présenté en figure 5.15. Nous avons en effet injecté dans le code collisionnel-radiatif le profil de la densité électronique  $n_e$  et de la température électronique  $T_e$  en fonction du temps, tel que nous

l'obtenons avec le code basé sur le modèle nano-plasma. Nous devrions *a priori* obtenir le même comportement du degré d'ionisation moyen en fonction du temps, comme le degré d'ionisation final par exemple. Nous pouvons comprendre cette différence de la manière suivante. Avec le code basé sur le modèle nano-plasma, l'ionisation collisionnelle est basée sur l'équation empirique de Lotz. A partir d'une distribution en état de charge des ions, nous calculons l'évolution de cette distribution pour le pas de temps suivant. Implicitement, il est supposé que tous les états ayant le même état de charge ont la même configuration électronique (état fondamental) et donc le même potentiel d'ionisation. Pourtant, deux ions peuvent avoir le même état de charge, mais pas la même configuration électronique. Autrement dit, le potentiel d'ionisation n'est pas le même pour tous les ions ayant le même état de charge. Pour tous les ions étant dans un état énergétique excité, le potentiel d'ionisation est moins important. Ceci est pris en considération par le code collisionnel-radiatif, puisque les dix premiers niveaux sont pris en compte de manière détaillée (les autres étant groupés en super-configurations – Cf. 1.4.2).



**Fig. 5.17:** Degré d'ionisation moyen pour différentes conditions d'éclairement sur cible en fonction du temps. L'éclairement crête sur cible est de  $3.10^{15}$ ,  $6.10^{15}$ ,  $1.10^{16}$  et  $5.10^{16}$   $W/cm^2$  pour les courbes représentées en trait plein, tirets longs, tirets courts et pointillés respectivement. La durée laser est de 300 fs à mi-hauteur et le rayon de l'agrégat initial est de 275 Å.

## 5.4 Conclusion

L'expérience montrée ici est le résultat de la première mise en œuvre d'une caméra à balayage de fente, couplée à un cristal, qui permette de résoudre spectralement et temporellement l'émission X émise par un plasma d'agrégats d'argon irradiés par laser. Les



résultats indiquent que l'émission X de couche K a une durée très courte, inférieure à la résolution temporelle de 3 ps, et que toutes les raies, dans la gamme spectrale observée (3,04-3,19 keV), sont émises ensemble dans un intervalle temporel de l'ordre de 1 ps.

A l'aide d'un code basé sur le modèle dit nano-plasma, nous avons calculé la densité électronique et température électronique en fonction du temps, pour différentes conditions d'éclairement. Injectés dans le code collisionnel-radiatif Transpec, ces paramètres nous ont permis de simuler les spectres résolus en temps pour chacun des éclairagements considérés. Les calculs reproduisent les spectres résolus en temps mesurés. Le rayonnement correspondant à la raie  $\text{He}_\alpha$  et ses satellites lithiumoïdes seraient séparés lors de l'émission par un délai inférieur à 200 fs, ce qui est cohérent avec nos mesures, mais la résolution temporelle ne nous permet pas de distinguer un tel délai.

En revanche, le code basé sur le modèle nano-plasma nous indique une distribution ionique qui n'est pas vérifiée expérimentalement. Des améliorations pourraient être obtenues en intégrant de nouveaux raffinements. D'une part, les phénomènes d'écrantage ne sont pas pris en compte. Lorsque la densité est importante (*i.e.* au début de l'interaction), les électrons libres présents induisent une diminution des potentiels d'ionisation. Le degré d'ionisation moyen devrait voir sa valeur ainsi augmenter [Micheau *et al.* 05]. D'autre part, le traitement actuel de l'ionisation à l'aide de la seule formule de Lotz limite les taux d'ionisation atteints. En effet, les niveaux d'énergie considérés jusqu'à présent sont les niveaux correspondant aux états non excités. Une description plus détaillée des premiers niveaux énergétiques d'excitation devrait également avoir pour effet d'augmenter le degré d'ionisation moyen calculé par ce code.

# Bibliographie Chapitre 5

- [Andiel *et al.* 03] Andiel U., Eidmann K., Pisani F., Witte K., Uschmann I., Wehrhan O. et Förster E.,  
*Conical x-ray crystal spectrometer for time integrated and time resolved measurements*, Rev. Sci. Instrum. **74** (2003), no. 4, 2369–2374.
- [Audebert *et al.* 05] Audebert P., Renaudin P., Bastiani-Ceccotti S., Geindre J.-P., Chenais-Popovics C., Tzortzakis S., Nagels-Silvert V., Shepherd R., Matsushima I., Gary S., Girard F., Peyrusse O. et Gauthier J.-C.,  
*Picosecond time-resolved X-ray absorption spectroscopy of ultrafast aluminum plasmas*, Phys. Rev. Lett. **94** (2005), 025004.
- [Caillaud *et al.* 06] Caillaud T., Blasco F., Bonté C., Dorchies F. et Mora P.,  
*Study of intense femtosecond laser propagation into a dense Ar gas and cluster jet*, Phys. Plasmas **13** (2006), 033105.
- [Deiss *et al.* 06] Deiss C., Rohringer N., Burgdörfer J., Lamour E., Prigent C., Rozet J.-P. et Vernhet D.,  
*Laser-Cluster Interaction : X-Ray Production by Short Laser Pulses*, Phys. Rev. Lett. **96** (2006), 013203.
- [Ditmire *et al.* 96] Ditmire T., Donnelly T., Rubenchik A.M., Falcone R.W. et Perry M.D.,  
*Interaction of intense laser pulses with atomic clusters*, Phys. Rev. A **53** (1996), no. 5, 3379–3402.
- [Dorchies *et al.* 05] Dorchies F., Caillaud T., Blasco F., Bonté C., Jouin H., Micheau S., Pons B. et Stevefelt J.,  
*Investigation of laser-irradiated Ar cluster dynamics from K-shell x-ray emission measurements*, Phys. Rev. E **71** (2005), 066410–1–8.
- [Gallant *et al.* 03] Gallant P., Kieffer J.C., Dorchies F. et Peyrusse O.,  
*Dynamics of Al thin foils irradiated by a subpicosecond high intensity laser pulse*, Phys. Plasmas **10** (2003), no. 3, 577–580.
- [Micheau *et al.* 05] Micheau S., Gutierrez F.A., Pons B. et Jouin H.,  
*Screening models for laser-cluster interactions*, J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys. **38** (2005), 3405–3422.



# Conclusion

Nous avons étudié le comportement temporel du rayonnement X émis par des agrégats irradiés par une impulsion laser femtoseconde intense. Pour réaliser de telles mesures à l'échelle de la picoseconde, nous avons développé un prototype de détecteur X ultra-rapide adapté à la haute cadence du laser (kHz) en collaboration avec l'I.N.R.S. (Varennnes, Canada). Il a fait l'objet d'une caractérisation complète et est capable de résoudre temporellement et spectralement un rayonnement X. Ce système de détection X a une résolution spatiale de  $49 \pm 9 \text{ }\mu\text{m}$ , soit  $0,7 \pm 0,1 \text{ eV}$  autour de 3 keV avec un montage couplant un cristal à la caméra à balayage de fente. La résolution temporelle de l'instrument est estimée à  $900 \pm 200 \text{ fs}$  à mi-hauteur dans le domaine des X en mode monocoup. Un système spécifique de commutateur optique a été développé de façon à opérer en mode récurrent tout en minimisant les effets de jitter. Ceci permet de conserver une résolution temporelle de  $1,8 \pm 0,3 \text{ ps}$  à mi-hauteur en mode cumulé (obtenu sur près de 1 000 000 tirs). L'utilisation du mode récurrent permet d'abaisser le seuil de détection jusqu'à 1,35 photon/tir/ps/mm<sup>2</sup>, pour un photon He $\alpha$  d'argon de 3,14 keV. Cette étude a permis de déterminer les principaux phénomènes physiques qui limitent les performances de l'instrument.

Ce détecteur fonctionne maintenant en routine sur les expériences et constituera un outil indispensable pour l'étude plus générale de la spectroscopie X résolue en temps de plasmas chauds et denses obtenus par un laser intense femtoseconde. De tels plasmas produits sur des cibles solides émettent pendant quelques picosecondes, voire une dizaine de picosecondes.

Nous avons mené une étude originale de l'évolution temporelle du rayonnement X émis par des agrégats d'argon irradiés par un champ laser intense. Son comportement est reproduit par un calcul basé sur un modèle nanoplasma et un code collisionnel-radiatif. Nous rappelons ici les principales conclusions du travail présenté.

Une première campagne expérimentale a consisté à mesurer la durée du rayonnement X issu de l'interaction laser-agrégats (agréats de 275 Å de rayon), avec une impulsion laser de durée variable. Cette étude a été réalisée sans résolution spectrale. En appliquant une série de filtres, nous avons sélectionné la gamme spectrale, en s'assurant de la seule mesure du rayonnement dont l'énergie était supérieure à 2 keV. Nous avons démontré pour la première fois que l'émission X multi-keV avait une durée très courte, inférieure à 2 ps, la limite de la résolution temporelle.

Un modèle simple d'expansion hydrodynamique permet d'expliquer la différence de durée du rayonnement X émis par une feuille irradiée et des agrégats irradiés en terme

de géométrie de cible : l'expansion hydrodynamique est plus rapide pour un plasma sphérique que plan et entraîne une extinction plus brutale de l'émission X. L'émission X est calculée à l'aide du code collisionnel-radiatif TRANSPEC à partir des paramètres hydrodynamiques  $n_e$  et  $T_e$  de densité et de température électronique déduit de ce modèle simple. Ces calculs semblent indiquer que la durée de l'émission est très courte, et que l'ensemble des raies de couche K est émis pendant un temps proche de la durée de l'impulsion laser.

Une seconde campagne expérimentale a permis d'obtenir pour la première fois la double résolution spectrale et temporelle de l'émission X produite par des agrégats d'argon (rayon de 275 Å) irradiés par une impulsion laser intense femtoseconde (durée à mi-hauteur de 300 fs et énergie sur cible de 3,3 mJ). Nous avons déterminé que l'émission X correspondant aux raies de couche K avait une durée inférieure à 3 ps, limitée par la résolution temporelle, et que les raies correspondant aux états de charge allant de  $\text{Ar}^{13+}$  à  $\text{Ar}^{16+}$  étaient émises avec un délai inférieur à 1 ps.

Un code a été développé, basé sur les hypothèses d'un modèle nanoplasma. Il permet d'obtenir le comportement de la densité électronique  $n_e$  et de la température électronique  $T_e$  en fonction du temps. Ces paramètres nous permettent alors de simuler les spectres X en fonction du temps à l'aide du code collisionnel-radiatif TRANSPEC, utilisé en post-processeur. Les résultats indiquent que la durée de l'émission du rayonnement X correspondant à nos conditions expérimentales est très courte, de l'ordre de 100 fs pour la raie  $\text{He}_\alpha$ , et que le délai entre l'émission des différentes raies dans la gamme observée (2,9 - 3,2 keV) est inférieur à 200 fs, ce qui est cohérent avec nos résultats expérimentaux. Par ailleurs, ces calculs rendent compte des états de charge très élevés observés, jusqu'à  $\text{Ar}^{16+}$ .

Nos résultats expérimentaux sont limités par la résolution temporelle de notre système de détection rapide. Une caractérisation temporelle du rayonnement X à l'échelle de la centaine de femtoseconde pourrait être envisagée en utilisant une technique indirecte, telle que la diffraction X résolue en temps par exemple [Rousse 04]. Nous pourrions alors obtenir une information plus précise sur la durée d'émission de la raie  $\text{He}_\alpha$  par exemple. Cependant, une étude de tout un spectre telle que nous l'avons réalisée paraît plus difficilement réalisable.

Le modèle nanoplasma développé au laboratoire peut encore être amélioré [Micheau 06]. En effet, la prise en compte de niveaux intermédiaires lors des processus d'ionisation (états excités) devrait notamment augmenter le degré d'ionisation moyen calculé, et atteindre des niveaux correspondant à ceux observés expérimentalement. Ceci devrait permettre une description complète de l'interaction et de l'émission X en un seul code.

Nous disposons dorénavant d'une source de rayonnement X intéressante. Le rendement de l'énergie laser dans les X est de l'ordre de  $10^{-5}$  autour de 3 keV, avec une émission dans  $4\pi$  stéradian. Cette source peut fonctionner au kHz sans émettre de débris. La durée de l'émission X est inférieure à 2 ps, voire quelques centaines de femtoseconde d'après les calculs. Cette durée d'émission très courte peut être mise à profit dans des applications en science X ultra-rapide. D'une part, on peut utiliser le comportement monochromatique de la source, pour la partie du spectre de couche K de l'argon autour de 3 keV, pour des applications en diffraction X résolue en temps par exemple. D'autre part, on peut utiliser une émission en "spectre plat", avec un gaz d'élément atomique plus lourd et en considérant l'émission de couches moins profondes (comme les couches M du xénon par exemple). Une telle source permettrait d'envisager des expériences de spectroscopie

---

d'absorption résolue en temps.



# Bibliographie Conclusion

- [Micheau 06] Micheau Samuel,  
*à paraître*, Thèse de doctorat, Université Bordeaux I, 2006.
- [Rousse 04] Rousse A.,  
*Sources de rayonnement X ultrabref générées par interaction laser-matière et leurs applications*, Habilitation à diriger des recherches, Université Paris XI - Laboratoire L.O.A., 26 Avril 2004.





## CARACTÉRISATION SPECTRALE ET TEMPORELLE DE L'ÉMISSION X ISSUE DE L'INTERACTION LASER – AGRÉGATS

Les agrégats de gaz rare constituent un état de la matière intermédiaire entre les cibles solides et les atomes en phase gazeuse. Il a été démontré que les agrégats irradiés sont sources d'ions, d'électrons, de neutrons énergétiques ainsi que de rayonnement allant du visible aux X durs. Cette source peut-être produite avec un taux de répétition élevé et a l'avantage de ne pas produire de débris, et de présenter une très forte conversion de l'énergie laser incidente. Nous nous intéressons au rayonnement X particulièrement, en le caractérisant en intensité, spectre et durée, comme préalable à toute application.

En collaboration avec l'INRS-Énergie (Varenne, Canada), nous avons mis en œuvre une caméra à balayage de fente dont la résolution temporelle est de 800 fs rms. En focalisant des impulsions laser courtes (30 fs - 5 ps) et intenses (jusqu'à  $10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>) sur des agrégats d'argon (15-30 nm), nous avons démontré que l'émission X dont l'énergie est supérieure à 2 keV est plus courte que la résolution temporelle. En couplant la caméra à un cristal tronconique, nous nous sommes intéressés au rayonnement de couche K dans la gamme 2,9 - 3,2 keV. Nous avons démontré que ce rayonnement a une durée inférieure à la résolution temporelle, et que les raies étaient émises avec un écart temporel relatif inférieur à 1 ps.

Une simulation basée sur un modèle nano-plasma et sur un code collisionnel-radiatif a été développée au CELIA. Les spectres X résolus en temps calculés reproduisent à la fois la brièveté d'émission du rayonnement X et les états de charge élevés observés.

**Mots clés :** *Agrégats - Impulsions femtoseconde - Rayonnement X ultra-bref - Spectroscopie X - Caméra à balayage de fente*

## SPECTRAL AND TEMPORAL CHARACTERIZATION OF LASER-CLUSTER INTERACTION-BASED X-RAY EMISSION

Rare gas clusters are an intermediate state of matter between the bulk material and molecules. Studies of their interaction with short and intense laser pulses have demonstrated the ability to yield energetic (multi-keV) X-rays, fast ions, electrons and even neutrons, owing to high laser energy absorption rates. Among these emission processes, we have specifically studied the intensity, the spectrum and the duration of X-rays, as a first step for cluster-based X-ray source applications.

In this context, a 800 fs rms time-resolution streak camera has been developed in collaboration with INRS-Energie (Varenes, Canada). We studied the behaviour of Ar clusters (with radii ranging from 15 to 30 nm) irradiated with short (30 fs - 5 ps) and intense (up to  $10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>) laser pulses from the CELIA kHz laser system. The emission in energetic X-rays (> 2 keV) has been observed to be shorter than the temporal resolution. By inserting in our set-up a conical crystal, we have been able to measure the duration of the K-shell emission together with a spectral resolution in the 2.9 - 3.2 keV range. The measurements indicate that the duration of these lines is extremely short, less than the temporal resolution, with signal accumulation corresponding to up to a few  $10^5$  shots.

We have further performed numerical simulations of both the laser-cluster interaction and the X-ray emission. Our calculations are based on a nanoplasma model and a time-dependant collisional-radiative code. Calculated time-resolved X-ray spectra seem to reproduce both the short duration emission and the observed high ionic charge state.

**Key words :** *Clusters - Femtosecond pulses - Ultrafast X-ray radiation - X-ray spectroscopy - Streak camera*